

*Untersuchungen zum Wachstumsverhalten  
von  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$  Schichten mit Au-  
Nanoclustern*

**Diplomarbeit**

Studiengang Werkstoffwissenschaften /  
Materialwissenschaften  
der  
Friedrich-Schiller-Universität Jena

**Michael Hübner**

Erstprüfer: PD Dr. rer. nat. habil. Frank Schmidl

Zweitprüfer: Prof. Dr. rer. nat. habil. Markus Rettenmayr

Bearbeitungszeitraum: 01.06.2010 bis 30.09.2010

Jena, September 2010

## Abkürzungsverzeichnis

AFM	Atomkraftmikroskop (-ie)
AG	Arbeitsgruppe
EDX	energiedispersive Röntgenstrahlung
E <sub>L</sub>	Laserenergie bzw. Laserleistung
f	Frequenz
FSU	Friedrich-Schiller-Universität
FWHM	Halbwertsbreite (engl. full width at half maximum)
H <sub>C2</sub>	kritische Magnetfeldstärke bezüglich Supraleitfähigkeit
HTSL	Hochtemperatursupraleiter
IOQ	Institut für Optik und Quantenelektronik
J <sub>C</sub>	kritische Stromdichte
PLD	gepulste Laserablation (engl. Pulsed Laser deposition)
P <sub>O2</sub>	Sauerstoffpartialdruck
R <sub>a</sub>	durchschnittliche Rauigkeit
REM	Rasterelektronenmikroskop (-ie)
R <sub>ms</sub>	quadratisch gemittelte Rauigkeit
STO	SrTiO <sub>3</sub>
SQUID	Superconducting Quantum Interference Devices
T <sub>C</sub>	Sprungtemperatur
TEM	Transmissionselektronenmikroskop (-ie)
T <sub>H</sub>	Heizertemperatur
YBCO	Y <sub>1</sub> Ba <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-x</sub>

# Inhaltsverzeichnis

<b>Abkürzungsverzeichnis .....</b>	<b>2</b>
<b>Inhaltsverzeichnis .....</b>	<b>3</b>
<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>5</b>
<b>Tabellenverzeichnis .....</b>	<b>7</b>
<b>1      Einleitung .....</b>	<b>8</b>
<b>2      Grundlagen.....</b>	<b>9</b>
2.1      Supraleitung.....	9
2.2      Pulsed Laser deposition (PLD).....	10
2.3      Epitaktisches Schichtwachstum.....	11
2.3.1      Wachstumsmodelle.....	12
2.3.2      Materialien für Schichtwachstum .....	13
2.3.2.1      Strontiumtitanat (STO) .....	14
2.3.2.2      Yttrium-Barium-Kupfer-Oxid (YBCO) .....	14
2.3.2.3      Gold (Au).....	16
<b>3      Experimentelle Methoden .....</b>	<b>18</b>
3.1      Probenpräparation.....	18
3.2      Schichterzeugung.....	19
3.2.1      YBCO-Schicht.....	21
3.2.2      Gold-Schicht .....	21
3.2.2.1      Strukturierung .....	21
3.3      Probenanalytik .....	22
3.3.1      Mikroskopie / Visuelle Kontrolle .....	22
3.3.2      Ermittlung der Sprungtemperatur .....	22
3.3.3      Röntgendiffraktometrie .....	24
3.3.3.1      Omega Scan ( $\omega$ -Scan).....	24
3.3.3.2      Rocking - Kurve ( $\omega$ - $2\theta$ -Scan).....	24
3.3.4      Atomkraftmikroskopie (AFM) .....	25
3.3.5      Rasterelektronenmikroskopie (REM).....	25
<b>4      Messergebnisse und Diskussion.....</b>	<b>27</b>
4.1      Optimierung von Anlage 2 .....	27
4.1.1      Parametervariation.....	27
4.1.1.1      Targetauswahl.....	27

4.1.1.2	Heizertemperatur ( $T_H$ ) .....	28
4.1.1.3	Sauerstoffpartialdruck ( $P_{O_2}$ ) .....	30
4.1.1.4	Kalibrierungsmessung von $E_L$ .....	31
4.1.2	Resultate der Parametervariation .....	32
4.1.2.1	Sprungtemperaturen ( $T_C$ -Werte) .....	32
4.1.2.2	Rauhigkeit ( $R_{ms}$ ) .....	35
4.1.2.3	Rockingkurven .....	37
4.2	Untersuchung mit Goldnanopartikeln .....	38
4.2.1	Resultate .....	39
4.2.1.1	Sprungtemperaturen ( $T_C$ -Werte) .....	39
4.2.1.2	Rauhigkeit ( $R_{ms}$ ) .....	40
4.2.1.3	Halbwertsbreite (FWHM) .....	41
4.2.1.4	Rasterelektronenmikroskopie (REM) .....	42
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>47</b>
<b>6</b>	<b>Ausblick .....</b>	<b>49</b>
6.1	Verbesserungsmöglichkeiten .....	49
6.2	Weiterführende Untersuchungen .....	49
	<b>Literaturverzeichnis .....</b>	<b>50</b>
	<b>Anhang A: Messwerte im Überblick .....</b>	<b>53</b>
A.1	Voruntersuchungen .....	53
A.2	Target D .....	54
A.3	Target E .....	55
A.4	Proben zur Goldabscheiderate .....	57
A.5	Goldnanopartikel mit Target E .....	58
	<b>Danksagung .....</b>	<b>59</b>
	<b>Erklärung .....</b>	<b>60</b>

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Ausbildung der Plasmafackel nach Einfallen vom Laserstrahl (türkiser Pfeil) auf das Target .....	10
Abbildung 2:	schematische Darstellung für PLD .....	11
Abbildung 3:	schematische Darstellung für Schichtwachstum.....	12
Abbildung 4:	Kristallstruktur von Strontiumtitanat: kubische Einheitszelle mit Gitterkonstante $a$ (links), tetragonale Tieftemperaturphase mit zugehöriger Gitterkonstante $a'$ (rechts); weiße Pfeile deuten Rotation der Sauerstoffoktaeder beim Phasenübergang an .....	14
Abbildung 5:	Einheitszelle von YBCO (a) und Abhängigkeit von $T_C$ auf Sauerstoffgehalt in $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ (b) .....	15
Abbildung 6:	schematischer Aufbau der PLD-Anlage (oben) und reale Ansicht.....	19
Abbildung 7:	schematische Darstellung der Sprungtemperaturmessung am Beispiel von Probe 2YA043 aufwärts gemessen .....	23
Abbildung 8:	schematische Darstellung der Röntgenanordnung.....	24
Abbildung 9:	Bestimmung von FWHM an Probe 2ya040 mit gefitteter Fläche (blau) und einer Messabweichung (rote Linie).....	25
Abbildung 10:	Einfluss auf Heizertemperatur bei konstantem Sauerstoffdruck von 30Pa an Target D und 35Pa an Target E .....	29
Abbildung 11:	schematische Darstellung des Heizers .....	30
Abbildung 12:	erzielte $T_C$ -Werte bei einer Heizertemperatur vom 790°C durch Variation des Sauerstoffdrucks von 10Pa bis 100Pa an verschiedenen Targets .....	31
Abbildung 13:	aufgenommene Laserleistung vor und nach der Probenkammer .....	32
Abbildung 14:	flächig aufgetragene Sprungtemperaturen an Target D bei Veränderung vom Sauerstoffpartialdruck und der Laserenergie mit konstanter Heizertemperatur bei 790°C .....	33
Abbildung 15:	mit Target E erzielten $T_C$ -Werte und deren Variation von Sauerstoffpartialdruck und Laserleistung bei 790°C Heizertemperatur .....	35
Abbildung 16:	zwei AFM-Aufnahmen unterschiedlicher Proben und Parametern 2ya028: $P_{O_2} = 40Pa$ , $E_L = 57mJ$ , $T_C = 89,7K$ , $R_{ms} = 3,9nm$ 2ya060: $P_{O_2} = 30Pa$ , $E_L = 60mJ$ , $T_C = 83,7K$ , $R_{ms} = 4,3nm$ .....	35
Abbildung 17:	Einfluss von Laserleistung und Sauerstoffpartialdruck auf $R_a$ (links) und $R_{ms}$ (rechts).....	36
Abbildung 18:	Darstellung von $R_{ms}$ und der Einfluss von Laserleistung und Sauerstoffpartialdruck in den Proben 2ya026 bis 2ya057 .....	36
Abbildung 19:	gemessene Halbwertsbreiten (FWHM) aus den Rockingkurven über deren Sprungtemperaturen von Probe 2ya025 bis einschließlich 2ya061 mit Vergleichsproben für Untersuchungen mit Au-Nanoclustern (rot).....	37
Abbildung 20:	Bestimmung der Goldabscheiderate bei $f=10Hz$ und $t=2min$ und der daraus resultierenden Rate abhängig von der Laserleistung.....	38

---

<i>Abbildung 21: Sprungtemperaturen mit veränderter Template-Schichtdicke .....</i>	<i>40</i>
<i>Abbildung 22: Rauigkeit mit steigender Dicke der Template-Schicht.....</i>	<i>41</i>
<i>Abbildung 23: Einfluss der Template-Schicht auf die Halbwertsbreite und die Vergleichsproben ohne Gold (rot) .....</i>	<i>42</i>
<i>Abbildung 24: EDX-Messung an Probe 2ya058.....</i>	<i>43</i>
<i>Abbildung 25: statistische Ausmessung der Bilder mit 10000facher Vergrößerung....</i>	<i>44</i>
<i>Abbildung 26: Aufnahme mit unterschiedlicher Goldschichtdicke bei 2000facher Vergrößerung (links) und 10000facher Vergrößerung (rechts) .....</i>	<i>45</i>
<i>Abbildung 27: 2ya068 mit EDX-Punktmessung auf einem Goldnanopartikel .....</i>	<i>46</i>

## Tabellenverzeichnis

<i>Tabelle 1:</i>	<i>charakteristische Eigenschaften für unterschiedliche hochtemperatur-supraleitende Materialien .....</i>	<i>16</i>
<i>Tabelle 2:</i>	<i>Zusammenfassung verschiedener Proben mit unterschiedlichem Target bei konstantem Druck von 30Pa .....</i>	<i>28</i>
<i>Tabelle 3:</i>	<i>resultierende Goldabscheideraten basierend auf Abbildung 20 .....</i>	<i>39</i>
<i>Tabelle 4:</i>	<i>Messergebnisse zu Voruntersuchungen ohne konstante Parameter .....</i>	<i>53</i>
<i>Tabelle 5:</i>	<i>Messergebnisse von Target D ohne konstante Parameter .....</i>	<i>54</i>
<i>Tabelle 6:</i>	<i>Messergebnisse von Target E ohne konstante Parameter .....</i>	<i>55</i>
<i>Tabelle 7:</i>	<i>Messergebnisse zur Goldabscheiderate an Target E .....</i>	<i>57</i>
<i>Tabelle 8:</i>	<i>Messergebnisse zu Untersuchungen mit Goldpartikeln an Target E ...</i>	<i>58</i>

# 1 Einleitung

Im Rahmen eines Forschungsprojektes an der FSU Jena im Institut für Festkörperphysik befasst sich die AG Tieftemperaturphysik mit laserbasierter Schichterzeugung. Inhaltlich geht es um Untersuchungen zum Wachstumsverhalten und zu Eigenschaften von Yttrium-Barium-Kupferoxid-Schichten (YBCO). Basierend auf bisherigen Ergebnissen sollen genauere Kenntnisse und Grundlagen für spätere Anwendungen wie SQUID's und Josephsonkontakte gesammelt werden. Die Herstellung qualitativ hochwertiger Schichten wurde mit einer existierenden Anlage (Anlage 1) realisiert. Zur Ausweitung der Untersuchungen soll die Abscheidung an einer weiteren Anlage etabliert werden. Beide Anlagen werden mittels PLD-Abscheidung zur Schichtherstellung genutzt. Sie unterscheiden sich jedoch in ihrem Aufbau, wodurch es zu Abweichungen in den optimalen Parametern kommt, um eine qualitativ hochwertige supraleitende Schicht mit einer Sprungtemperatur über 90K zu erreichen.

Für die Ausweitung der Untersuchungen ist eine parallele Betreibung von Anlage 1 und Anlage 2 notwendig. Dies setzt voraus, dass die erzeugten Schichten in ihrer kristallografischen Qualität und den supraleitenden Eigenschaften gleichwertig sind. Die Herstellung der Schichten soll unabhängig von der verwendeten Anlage zu entsprechend gleichen Ergebnissen führen. Ein inhaltlicher Schwerpunkt dieser Arbeit ist die Optimierung des Abscheidungsprozesses an der neuen Anlage 2.

Aus Voruntersuchungen ist bekannt, dass eine Modifizierung der Eigenschaften durch Goldcluster möglich ist [1]. Ferner untersucht die vorliegende Arbeit das YBCO-Schichtwachstum mit Goldnanoclustern. Hierzu werden Proben von Anlage 2 mit einer „Template-Schicht“ versehen. Diese besteht aus Gold und wird direkt auf dem Substrat abgeschieden. Darauf wächst die YBCO-Schicht. Eine Variation der Goldschichtdicke soll den Einfluss auf das YBCO-Schichtwachstum und die Goldclusterbildung klären. Welche Bedingungen notwendig sind und wie diese Goldclusterbildung stattfindet, wird im Rahmen dieser Arbeit angeschnitten. Umfangreichere Untersuchungen sollten an diesen Ergebnissen ansetzen, um das Wachstumsverhalten an sich und den Einfluss der Au-Nanocluster genauer zu klären.



## 2 Grundlagen

Bei der Herstellung von Schichten für HTSL-Bauteile werden verschiedene physikalische Verfahren genutzt. Hierzu zählen unter anderem Dampfphasenabscheidung, gepulste Laserdeposition, Kathodenzerstäubung oder thermische Verdampfung. Alle genannten Verfahren basieren auf dem Prinzip der physikalischen Gasphasenabscheidung [2]. Die Probenherstellung im Rahmen dieser Arbeit erfolgte ausschließlich mittels PLD. Um diese Schichten genauer zu charakterisieren und zu analysieren wurden ebenfalls verschiedene Methoden genutzt. Proben wurden beispielsweise mittels Röntgendiffraktometrie oder per Mikroskopie festkörperanalytisch untersucht. Im Folgenden werden die zugrunde liegenden Phänomene und Untersuchungsmethoden detaillierter beschrieben.

### 2.1 Supraleitung

Bei tiefen Temperaturen kommt es bei einer Reihe von elektrisch leitfähigen Elementen zum Phänomen der Supraleitung. Die Träger dieses supraleitenden Zustands sind Cooper-Paare, die entweder aus zwei Elektronen oder Löchern bestehen. Beide Träger weisen einen antiparallelen Spin und einen Impuls auf. Wird eine bestimmte Temperatur (Sprungtemperatur  $T_c$ ) unterschritten, verschwindet der elektrische Gleichstromwiderstand. Dieser Vorgang ereignet sich innerhalb eines sehr kleinen Temperaturintervalls, sodass ein plötzlicher Abfall des Widerstandes um mehrere Größenordnung bis unter die Nachweisgrenze stattfindet [3, 4]. Es erfolgt der Übergang von der normalleitenden in die supraleitende Phase [5]. Diese Sprungtemperatur ist somit neben der kritischen Stromdichte ( $J_c$ ) ein wichtiger experimenteller Parameter, um dünne supraleitende Schichten zu beschreiben.

Die Verringerung des Widerstandes aufgrund der  $T_c$ -Unterschreitung bewirkt ein ideal diamagnetisches Verhalten. Dieser Effekt wird als Meißner-Ochsenfeld-Effekt bezeichnet und beschreibt die vollständige Verdrängung eines angelegten Magnetfeldes aus dem Inneren des Supraleiters. An der Oberfläche fließen lediglich Abschirmströme. In der Meißner-Phase wird ein Zustand des verlustfreien Stromtransportes realisiert, solange eine kritische Stromdichte ( $J_c$ ) nicht überschritten wird. Bei Eintauchung eines Supraleiters zweiter Art in ein Magnetfeld kommt es zur Ausbildung so genannter Flussschläuche. Hierbei werden die Feldlinien gebündelt. Diese treten als lokale Pinning-Zentren auf. Die Kohärenzlänge ist dabei eine charakteristische Größe, welche die Wechselwirkung eines Cooper-Paares im Übergangsbereich beschreibt [6].

## 2.2 Pulsed Laser deposition (PLD)

Mittels Laserdeposition oder Laserablation werden dünne Schichten komplexer Verbindung hergestellt. Erstmals wurde dieses Verfahren 1965 von Smith und Turner angewendet, um optische Dünnschichten zu erzeugen [7]. Für YBCO wurde dieses Verfahren erstmal 1987 eingesetzt [8].

Bei gepulster Laserdeposition wird Energie zum Vaporisieren des Targetmaterials benötigt. Diese liefert beispielsweise ein Excimerlaser. Der eingesetzte Laserimpuls soll möglichst kurz und hochenergetisch sein, um das Target an der Oberfläche lokal aufzuheizen und das Material explosionsartig abzulösen. Die elementaren Komponenten aus der Festphase werden in eine Gasphase (Plasma) überführt. Die komplexen Verbindungen zerfallen in ihre einzelnen Bestandteile bzw. in deren Oxide. Für YBCO ist eine Aufspaltung in YO, BaO und CuO bekannt [9]. Die Eindringtiefe der auftreffenden Laserleistung beträgt bei YBCO etwa 50nm [10]. Die energiereichen Teilchen kollidieren mit dem Hintergrundgas und werden hierdurch angeregt. Aufgrund dieser Energiekoppelungsprozesse erfolgen ein optischer Übergang und eine sichtbare Ausbildung von Plasma [6, 11]. Dieses ist während des Prozesses für das menschliche Auge sichtbar und wird im Allgemeinen als Plasmafackel oder Plasmakeule bezeichnet (Abbildung 1).

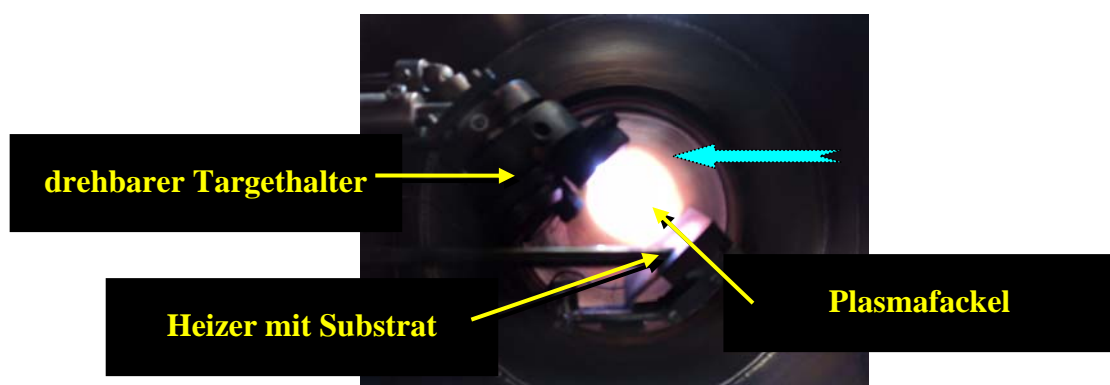


Abbildung 1: Ausbildung der Plasmafackel nach Einfallen vom Laserstrahl (türkiser Pfeil) auf das Target

Der Materialabtrag erfolgt unabhängig vom Einfallswinkel des Laserstrahls senkrecht zur Targetoberfläche. Befindet sich ein Substrat oder ein anderes Bauteil im Ausbreitungskegel des Materialstroms, werden auf diesem dünne Schichten erzeugt.

Bei Herauslösung von größeren Clustern aus der Targetoberfläche kann es zur Bildung von Droplets kommen. Hierbei handelt es sich um kondensierte Tröpfchen an der Probenoberfläche, welche vor allem in mehrschichtigen Systemen unerwünscht sind, da sie zu lokaler Inhomogenität im abgeschiedenen Film führen. Durch Winkelveränderung zwischen Probenoberfläche und Teilchenausbreitungsrichtung wird die Droplet-Bildung minimiert [12, 13]. Diese Methode wird als off-axis-Verfahren

bezeichnet. Eine zusätzliche Rotation vom Target sorgt für eine Minimierung der Inhomogenitäten beim Schichtwachstum. Beim on-axis-Verfahren dagegen muss die Depositionsrates sehr gering sein. In der Praxis wird meist eine Kombination beider Anwendungen genutzt. Ein wesentlicher Vorteil von PLD ist die hohe Flexibilität bezüglich der möglichen Materialsysteme.

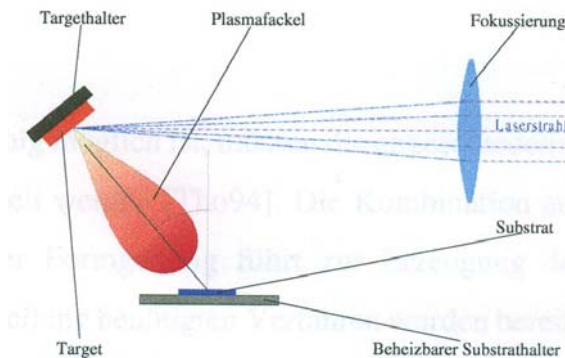


Abbildung 2: schematische Darstellung für PLD

Der Prozess der Laserablation bzw. -deposition findet normalerweise im Vakuum, d.h. bei Drücken  $<10^{-3}$  Pa statt. Bei einer Abscheidung von Oxidverbindungen kann dem System Gas zugeführt werden. Es herrscht innerhalb der Probenkammer ein definierter Druck, der sich vom Vakuum unterscheidet. Es besteht die Möglichkeit das Schichtwachstum durch eine Variation der Sauerstoffstöchiometrie zu beeinflussen. Dies ist beispielsweise durch unterschiedliche Sauerstoffpartialdrücke während der Deposition oder durch nachträgliche Temperaturzyklen möglich. Zur Realisierung homogener epitaktischer Schichten mit guter Kristallqualität ist meist eine Abscheidung bei Temperaturen oberhalb der Raumtemperatur notwendig, was durch entsprechendes Heizen erreicht werden kann.

Aufgrund des stöchiometrischen Materialabtrags und der Erzeugung epitaktischer Schichten mit guter Kristallqualität hat sich das PLD zu einem etablierten Verfahren für HTSL-Schichten entwickelt [14]. Problematisch ist die Schichthomogenität aufgrund der gerichteten Schichtabscheidung. Eine Relativbewegung der Plasmafackel zum Substrat fördert die Homogenität der Schichtdicke auf der gesamten Substratoberfläche [15]. Dies lässt sich am einfachsten mit einem Scanner realisieren, der den Laserstrahl über das Target abrastert.

## 2.3 Epitaktisches Schichtwachstum

Hinter dem Begriff Epitaxie verbirgt sich ein orientiertes Schichtwachstum auf einer einkristallinen Unterlage (Substrat). Es handelt sich hierbei um ein komplexes Phänomen aus verschiedenen physikalischen Prozessen. Diese sind neben der

Anlagerung von Teilchen aus der Gasphase an der Substratoberfläche und der Bildung von Schichtbereichen aus wenigen Atomlagen, auch das Wachstum und die Ausrichtung hinsichtlich der Substratorientierung. Das epitaktische Wachstum beinhaltet verschiedenste Teilaspekte von Material- und Prozessgrößen. Aus diesem Grund existiert keine geschlossene Gesamtheorie [5].

### 2.3.1 Wachstumsmodelle

Prinzipiell erfolgt das Schichtwachstum in drei Teilschritten. Die erste Phase wird als Erzeugungsphase bezeichnet. Hierbei wird das Material vom Target in die Dampfphase überführt. Danach schließt sich Phase zwei an, die Transportphase. Das gasförmige Material dehnt sich aus und liegt nun als Plasma vor. In der letzten Phase, der Kondensations- und Aufbauphase, kommt es zur Ablagerung des Plasmas auf dem Substrat. Daraus resultiert die Schichtausbildung [6]. Durch den Einfluss verschiedener Prozesse treten unterschiedliche Wachstumsmodi auf. Für das Wachstum von Kristallen an der Oberfläche eines anderen Kristalls gibt es zwei grundlegende Modi. Es wird zwischen Lagenwachstum (Frank van der Merwe) und Inselwachstum (Volmer-Weber) unterschieden. Die Abbildung 3 zeigt eine entsprechende schematische Darstellung dieser Wachstumsmodi. Ausgangspunkt beider Arten sind Keime, die je nach ihrer Form und Anzahl das weitere Schichtwachstum beeinflussen.



Abbildung 3: schematische Darstellung für Schichtwachstum

Beim Lagenwachstum lagern sich Atome an die zweidimensionalen Keime an und bilden lagenweise Schichten aus. Dabei wird zwischen dem Substrat und der Schicht eine starke Wechselwirkung hervorgerufen. Dies wird vorzugsweise für epitaktische Filme mit einer geringen Oberflächenrauigkeit angestrebt. Bei Defekten oder Fehlorientierungen an der Substratoberfläche können die Schichten von der Idealausrichtung abweichen und es entstehen zahlreiche Stufen.

Das Inselwachstum basiert auf dreidimensionalen Keimen. Es kommt zu starken Wechselwirkungen zwischen den Schichtatomen. Im Vergleich zum Lagenwachstum kommt es zu einer höheren Oberflächenrauigkeit.

Zusätzlich existiert eine Mischform beider Wachstumsmodi, die nach Stranski und Krastanov benannt wurde [16]. Hierbei schlägt das anfängliche Lagenwachstum in ein Inselwachstum um, weil die mechanischen Verspannungen mit wachsender Schichtdicke immer größer werden. Die Veränderung der Struktur in ein inselartiges Wachstum dient dem Spannungsabbau [5] und tritt im Allgemeinen beim YBCO auf. Dabei ordnen sich die Atome auf der Oberfläche bevorzugt an Stufenkanten des Substrates bzw. der wachsenden Schicht an. Diese Stufen breiten sich dann parallel zur Substratoberfläche aus. Häufig bilden sich dadurch an Schraubenversetzungen Wachstumsspiralen, welche die Oberflächenstruktur der wachsenden Schicht dominieren können. Häufiges Auftreten von Schraubenversetzungen kann dadurch erklärt werden, dass verkippte Wachstumsfronten aufeinander treffen oder durch Oberflächendefekte gestört werden. Zudem ist denkbar, dass die Schraubenversetzungen direkt an Versetzungen im Substrat oder durch die Relaxation von epitaktischen Verspannungen in der Schicht entstehen [17, 18]

### 2.3.2 Materialien für Schichtwachstum

Im Rahmen der Dünnschichttechnik wird eine Vielzahl von Schichtsystemen eingesetzt. Es existieren Einschichtsysteme (Monolayer) und Mehrschichtsysteme (Multilayer). Die Mehrschichtsysteme weisen eine Vielfalt an Materialkombinationen auf.

Bei supraleitfähigen Schichten hängt die Qualität entscheidend von der Kristallstruktur und der Ordnung im Kristall ab. Jede Störung, z.B. durch Korngrenzen oder andere Schichten, kann die Bindung der supraleitfähigen Ladungsträger unterbrechen. Dies hat eine Verringerung von  $T_C$  beziehungsweise  $J_C$  zur Folge und beeinflusst dadurch die Schichtqualität negativ. Die Anzahl der Defekte und Fehlstellen soll möglichst niedrig gehalten werden, da es sonst zu Störstellenwachstum in der aufwachsenden Schicht kommt. Auf der anderen Seite können Defekte als Pinning-Zentren agieren. Hier werden magnetische Flusslinien verankert, wodurch  $J_C$  bei  $H_{C2}$  gesteigert werden kann. Eine gute Oberflächentopologie ist besonders bei mehrlagigen Schichtsystemen ein ausschlaggebendes Kriterium für gutes Schichtwachstum [6].

In der vorliegenden Arbeit wird (100)-orientiertes Strontiumtitanat als Substrat verwendet. Darauf wachsen per PLD weitere Schichten. Die Schichtanordnung ausgehend vom Substrat ist:

- STO / YBCO
- STO / YBCO / Au
- STO / Au / YBCO

### 2.3.2.1 Strontiumtitanat (STO)

Das einkristalline Strontiumtitanat (STO) nimmt bei Raumtemperatur die kubische Perowskit-Struktur an. Die allgemeine Strukturformel lautet  $ABX_3$ . Diese Verbindung besteht aus zwei Metallkationen (A, B) und einem Nichtmetallion (X). Bei dem Nichtmetallion handelt es sich um Sauerstoff. Das A wird von einem Strontiumatom und B von einem Titanatom besetzt [6]. In Abhängigkeit von der Temperatur bilden sich unterschiedliche Phasen aus. Basierend auf Verzerrungen entstehen tetragonale und orthorhombische Formen [19]. Ursache dafür sind strukturelle Phasenübergänge aufgrund der Größe der Sauerstoffoktaeder. Aus Untersuchungen geht hervor, dass die Kristallachsen für kubisches STO in alle drei Raumrichtungen gleich lang sind [20]. Die Gitterkonstante  $a$  nimmt einen Wert von  $3,905\text{\AA}$  an [21, 22].

Um die Stabilität des Perowskits bewerten zu können, wird ein Toleranzfaktor nach der Regel von Goldschmidt bestimmt [23, 24]. Eine Abweichungen vom idealen Wert (Wert = 1) bewirkt häufig strukturelle Phasenübergänge, die mit Verkippen der Sauerstoffoktaeder verbunden sind. Ungewiss ist dabei, um was für einen Verkipfungstyp es sich beim Übergang handelt. Im Falle von STO liegt der Toleranzfaktor bei  $1,009$  [25].

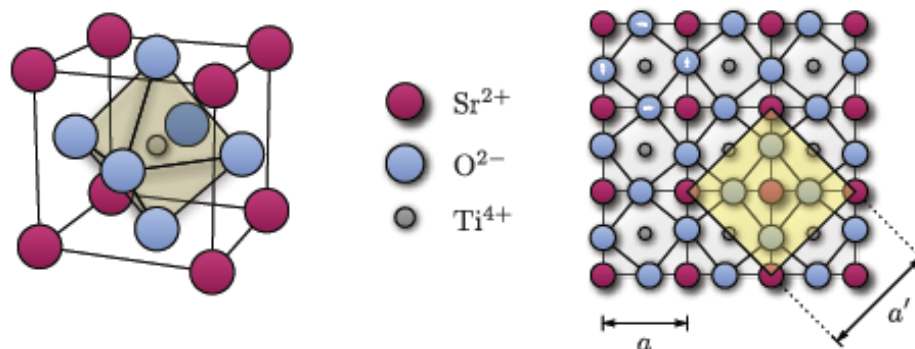


Abbildung 4: Kristallstruktur von Strontiumtitanat: kubische Einheitszelle mit Gitterkonstante  $a$  (links), tetragonale Tieftemperaturphase mit zugehöriger Gitterkonstante  $a'$  (rechts); weiße Pfeile deuten Rotation der Sauerstoffoktaeder beim Phasenübergang an

### 2.3.2.2 Yttrium-Barium-Kupfer-Oxid (YBCO)

Das  $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  zählt zu der Klasse der so genannten Kupratsupraleiter, die einen stark anisotropen Kristallaufbau besitzt [26]. In der 123-Struktur ist es der meist verwendete Hochtemperatursupraleiter zur Herstellung von supraleitenden Bauelementen. Für die Gitterkonstante gilt näherungsweise  $a \approx b \approx 1/3 c$ . Diese ähnelt einer Einheitszelle von drei unvollständigen gestapelten Perowskiteinheitszellen. Fehlstellungen oder Abweichungen von der Idealposition werden durch Stöchiometrieabweichungen verursacht. Die Eigenschaften werden entscheidend durch

dessen Kristallstruktur bestimmt, insbesondere die Sauerstoffstöchiometrie und die daraus resultierende Anordnung der Sauerstoffatome in der Einheitszelle. Beide bestimmen entscheidend die Ausbildung einer supraleitenden Phase. Der in der Strukturformel durch ein  $x$  beschriebener Sauerstoffgehalt hat einen signifikanten Einfluss [27]. Abbildung 5 zeigt die räumliche Anordnung vom YBCO und den Einfluss des Sauerstoffgehaltes auf die Sprungtemperatur.

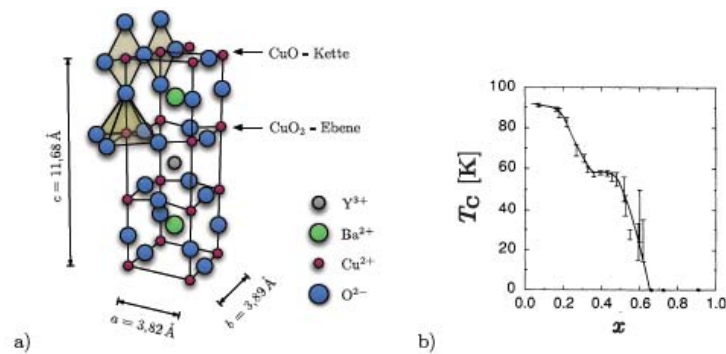


Abbildung 5: Einheitszelle von YBCO (a) und Abhängigkeit von  $T_C$  auf Sauerstoffgehalt in  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$  (b)

Abhängig vom Sauerstoffgehalt können im YBCO unterschiedliche strukturelle Phasen identifiziert werden. Für  $x = 1$  bildet sich eine tetragonale Phase mit  $a = b = 3,860 \text{ \AA}$  und  $c = 11,817 \text{ \AA}$ . Hier fehlt der Sauerstoff entlang der Kanten der Einheitszelle in  $a$ - und  $b$ -Richtung komplett, während alle anderen Sauerstoffpositionen voll besetzt bleiben. Wird der Sauerstoffanteil erhöht, erfolgt zunächst ein gleichmäßiger Einbau des Sauerstoffs in die Fehlstellen entlang der  $a$ - und  $b$ -Achse. Ab  $x = 0,65$  kommt es zu einer Umverteilung des Sauerstoffs zugunsten der  $b$ -Achse. Entlang der  $a$ -Achse sinkt die Besetzung mit steigendem Sauerstoffgehalt auf Null ab, wodurch die Verringerung der Gitterkonstanten zu erklären ist [27-29]. Die strukturellen Veränderungen korrelieren direkt mit den supraleitenden Eigenschaften.

Um die gewachsene Schicht in die supraleitende orthorhombische Phase zu überführen, muss diese bei hinreichend hohem Sauerstoffdruck durch langsames Abkühlen oder durch zusätzliches Tempern unterhalb der Phasenübergangstemperatur ausheilen. Die orthorhombische Phase tritt beispielsweise bei Temperaturen unter  $450^\circ\text{C}$  und bei atmosphärischem Sauerstoffdruck auf. Es kommt zur Ausbildung supraleitender Eigenschaften [30].

Im Rahmen von Untersuchungen hat sich gezeigt, dass die Ausbildung einer spezifischen Struktur ein epitaktisches Schichtwachstum voraussetzt. Dazu wird das Material auf einer geeigneten Unterlage (Substrat) abgeschieden. Im Idealfall überträgt sich die Struktur des Substrates auf die wachsende Schicht. An das Substrat und die Schicht werden hohe kristallographische Ansprüche gestellt. Neben ähnlichen

Strukturparametern sollten annähernd gleiche thermische Ausdehnungskoeffizienten vorliegen. Letztere bewirken beim Abkühlen der Schicht auf Raumtemperatur thermisch induzierte Verspannungen, die zu einer mechanischen Verspannung zwischen Schicht und Unterlage führt. Tabelle 1 fasst unterschiedliche Materialien hinsichtlich einiger Parameter zusammen. Daraus geht hervor, dass STO für ein epitaktisches Schichtwachstum von YBCO ideal geeignet ist. Aufgrund des gleichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von YBCO und STO lässt sich nahezu jede Schichtdicke realisieren. Bei reinem Si liegt zwar eine geringere Gitterfehl-anpassung vor, jedoch treten wesentlich größere thermische Ausdehnungskoeffizienten auf. Zudem führen eine chemische Inkompatibilität und eine dünne SiO<sub>2</sub>-Schicht an der Substratoberfläche dazu, dass sich keine supraleitende YBCO-Phase ausbilden kann. Wird das aufwachsende YBCO chemisch von der Si-Unterlage entkoppelt, ist die Verwendung von Si als Substrat möglich [31, 32]. Dazu werden Pufferschichten erzeugt, die unter anderem als Diffusionsbarrieren dienen.

*Tabelle 1: charakteristische Eigenschaften für unterschiedliche hochtemperatur-supraleitende Materialien*

Material	Strukturtyp	Gitterkonstante in [Å]			Gitterfehl-anpassung zu YBCO in [%]	thermischer Ausdehnungs-koeffizient in [10 <sup>-6</sup> /K]
		a	b	c		
Y <sub>1</sub> Ba <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-x</sub>	orthorhombisch	3,82	3,89	11,68	---	10
SrTiO <sub>3</sub>	kubisch		3,91		1,4	10
Si	kubisch		5,43		0,4	4

### 2.3.2.3 Gold (Au)

Die reine Goldschicht hat im Rahmen dieser Arbeit zwei Funktionen. Primär wird diese aufgetragen, um eine bessere elektrische Kontaktierung für die T<sub>C</sub>-Messung zu erzielen. Die hohe Teilchenenergie wirkt auf die saubere Oberfläche ein und fördert somit zusätzlich die mechanische Stabilität. Eine bei Raumtemperatur auf das Substrat aufgebrachte reine Goldschicht fungiert als Haftvermittler. Reine supraleitende Schichten können schlecht direkt mit Gold angebondet werden. Hierbei kommen Edelmetalle zum Einsatz, weil diese unter Normalbedingung gegenüber YBCO chemisch inaktiv sind und einen guten Übergangswiderstand gewährleisten [33, 34]. Dieser Vorgang wird als Metallisierung bezeichnet. Bei Untersuchungen wurde mit der Parametereinstellung E<sub>L</sub> ≈ 400mJ, f = 50Hz und einer Abscheidedauer von 30s ein inselartiges Schichtwachstum hergestellt [35].



Ferner fungiert die reine Goldschicht als eine „Template-Schicht“. Diese befindet sich zwischen Substrat und YBCO-Schicht und dient als so genannte Nährschicht für die Goldnanocluster. Aus dieser Schicht diffundieren Goldpartikel an die Oberfläche der darauf liegenden YBCO-Schicht und bilden Ausscheidungen. Je mehr dieser Ausscheidungen auftreten, desto wahrscheinlicher ist das Zusammenwachsen dieser Partikel. Final soll eine Clusterbildung der Goldpartikel auf der YBCO-Schicht erfolgen.

### 3 Experimentelle Methoden

Im Rahmen dieser Arbeit werden Proben erzeugt, die im Wesentlichen die nachfolgenden Arbeitsschritte durchlaufen. Zuerst erfolgt das Auswählen und Vorbereiten des Substrates. Dieses wird gereinigt und einer ersten Qualitätskontrolle unterzogen. Anschließend werden die Proben in die Vakuumanlage (Anlage 2) eingeschleust und ein Vorvakuum in der Kammer erzeugt. Es beträgt  $\sim 10^{-5}$  Pa. Entsprechend der Parameter Heizertemperatur, Laserleistung und Sauerstoffpartialdruck erfolgt nun der PLD-Prozess über eine definierte Dauer. Daran schließt sich eine Abkühlung der Proben auf Raumtemperatur an, welche in sauerstoffangereicherter Atmosphäre stattfindet. Im letzten Arbeitsschritt werden die Proben ausgebaut und stehen für folgende weitere Untersuchungen zur Verfügung:

- die Bestimmung der Sprungtemperatur,
- die Ermittlung der Rauigkeit per AFM,
- die Halbwertsbreite mittels Röntgendiffraktometrie,
- die rasterelektronische Aufnahme

Eine detaillierte Beschreibung der Arbeitsschritte erfolgt in den anschließenden Kapiteln.

#### 3.1 Probenpräparation

Zunächst muss ein geeignetes Substrat ausgewählt und auf mögliche Vorschädigung untersucht werden. Dies erfolgt per Mikroskop, das genauer im Abschnitt Mikroskopie / Visuelle Kontrolle beschrieben wird. Bei dem Substrat handelt es sich um (100) orientiertes Strontiumtitanat. Dieses steht als 5mm\*10mm\*1mm Plättchen zur Verfügung und ist einseitig poliert. STO wird in Aceton eingetaucht und per Ultraschallbad gereinigt. Danach wird das Substrat in Isopropanol überführt und nach etwa 30s mittels Reinststickstoff abgepustet. Im letzten Arbeitsschritt wird nun mit einem acetongetränkten feinem Tuch nochmals die Substratoberfläche gereinigt. Abschließend erfolgt die Kontrolle der Sauberkeit unter dem Mikroskop. Je nach Verunreinigung des Substrates erfolgt eine mehrfache Anwendung dieser Abfolge der Arbeitsschritte.

### 3.2 Schichterzeugung

Alle in dieser Arbeit beschriebenen epitaktischen Abscheidungen mittels PLD wurden in Anlage 2 durchgeführt. Abbildung 6 zeigt den schematischen Aufbau und die verwendeten Bauteile.

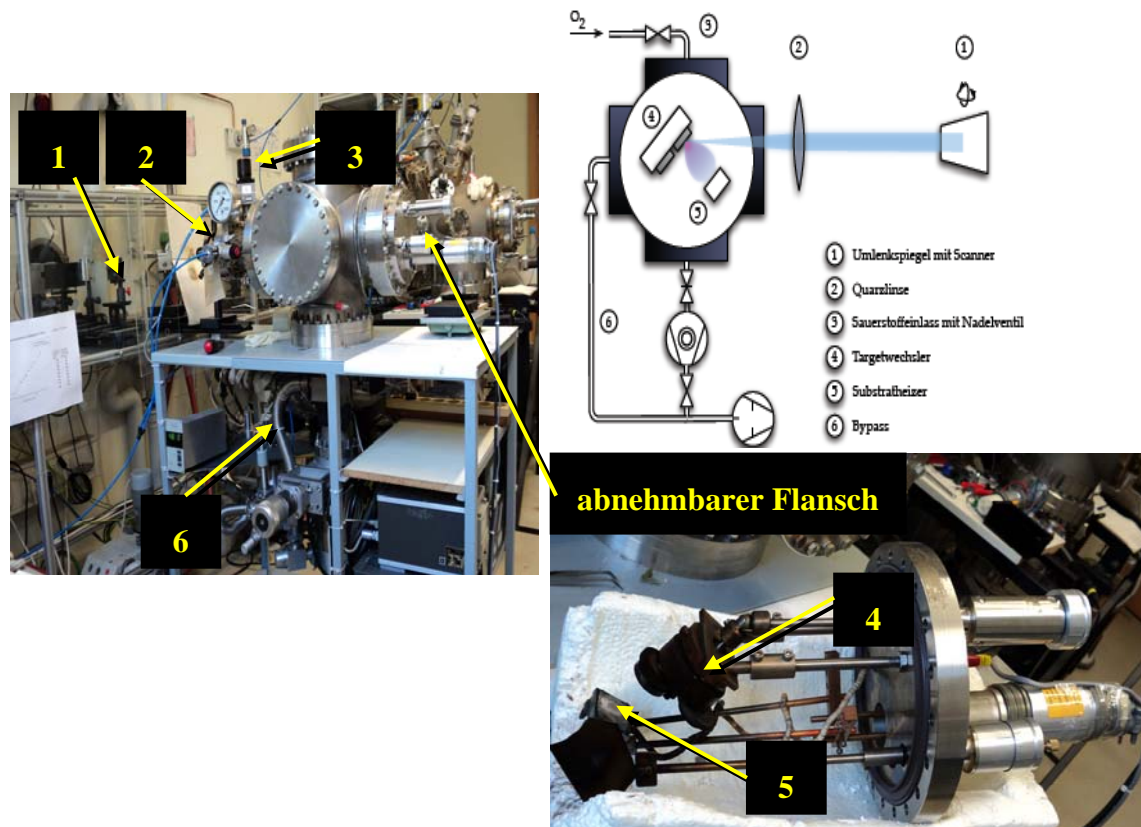


Abbildung 6: schematischer Aufbau der PLD-Anlage (oben) und reale Ansicht

Nach der Reinigung der Substrate schließt sich die Fixierung des Substrates auf der Heizplatte an. Diese befindet sich auf einem herausnehmbaren Flansch. Hierbei wird flüssiges Leitsilber auf die Heizplatte aufgetragen und das STO-Plättchen darauf positioniert. Es ist darauf zu achten, dass ein geschlossener Wulst vom Leitsilber um das Plättchen anliegt. Dies bewirkt einen besseren Halt der Probe und eine gleichmäßigere Ankontaktierung. Anschließend wird die Heizplatte auf über 300°C erhitzt, sodass das Lösungsmittel verdampft und es zur Gasbildung kommt. Für die spätere Schichtbildung ist eine gleichmäßige Erwärmung notwendig. Die homogene Ankontaktierung geht mit einer gleichmäßigen thermischen Übertragung von der Heizplatte auf das Substrat einher.

Der Laserstrahl wird mittels eines Abschwächers zur genauen Einstellung der Laserenergie geleitet und anschließend über ein Spiegelsystem und eine Quarzlinse auf das Target in der Anlage fokussiert. Mithilfe von Schrittmotoren (Scanner) wird ein Umlenkspiegel verkippt, dass das Target in einem rechteckigen Profil abgerastert wird.

Auf diese Weise kann die Dropletbildung vermindert und gleichzeitig eine bessere Schichtdickenhomogenität erreicht werden. Vor jeder Beschichtung wird die Laserenergie mit Hilfe eines Ophir-Energiemonitors in der Anlage kontrolliert.

Nun wird die Probe in die Anlage 2 eingebaut und ein Vakuum erzeugt, welches etwa bei einer Größenordnung um  $10^{-5}$  Pa liegt. Zur Erzeugung des Vakuums kommen eine Drehschiebepumpe und eine wasserdurchlaufgekühlte Turbopumpe zum Einsatz. In Anlage 2 befindet sich ein drehbarer Targethalter, der bis zu drei verschiedene Targetmaterialien fassen kann. Diese werden je nach abzuschheidender Schicht in den Laserstrahl positioniert. Der Abstand zwischen Substrat und Target beträgt in etwa 4 cm. Das Substrat wird auf die gewünschte Temperatur erhitzt und der Sauerstoffdruck eingestellt. Anschließend wird der Laser aktiviert. Hierbei kommt der Excimer-Laser „LPX 305I“ aus dem Hause Lambda Physik zum Einsatz. Es stehen zwei unterschiedlichen Modi zur Verfügung, die konstante Laserenergie oder die konstante Laserleistung. Vorwiegend wurde mit konstanter Energie bei 800 mJ am Laser gearbeitet. Per Absorberblende wird eine entsprechende Energie für das Parameterfeld justiert. Die Ausrichtung der Plasmafackel ist notwendig, damit das Substrat optimal im Ausbreitungsbereich liegt.

Nun findet die Beschichtung mit unterschiedlicher Beschichtungsdauer am ausgewählten Target statt. Die Temperaturkontrolle erfolgt über ein an der Heizplatte befestigtes Thermoelement, mit dessen Hilfe der Heizstrom während der Beschichtung gesteuert wird. In dieser Anordnung ist eine genaue Bestimmung der Substratoberflächentemperatur nicht möglich. Aus diesem Grund wird im Folgenden die Heizertemperatur  $T_H$  als Prozessparameter angegeben. Für die Abscheidung wird über ein Nadelventil ein konstanter Sauerstoffdruck  $P_{O_2}$  eingestellt. Um eine Überlastung der Turbopumpe bei der Abscheidung zu verhindern, wird diese während der Ablation abgekoppelt und direkt über einen Bypass mit der Drehschieberpumpe weiter gepumpt. Nach Abschluss der Beschichtung erfolgt eine Temperaturreduzierung in sauerstoffangereicherter Atmosphäre. Der Kammerinnendruck liegt bei 800 mbar. Die Temperatur wird mit  $\sim 1^\circ\text{C}$  pro Sekunde bis auf Raumtemperatur erniedrigt. Die Realisierung erfolgt mittels einer T-Rampenprogrammierung und dient der Einstellung der notwendigen Sauerstoffstöchiometrie der Schicht. Ist die Raumtemperatur erreicht, wird die Vakuumkammer mit Stickstoff belüftet. Abschließend wird die fertige Probe von der Heizplatte abgelöst und die Substratunterseite von Rückständen des Leitsilbers befreit. Die Probe steht nun weiteren Untersuchungen zur Verfügung.

Die Versuchsreihe in der vorliegenden Arbeit umfasst die Herstellung von YBCO- und Au-Schichten. Der Unterschied in der Erzeugung beider Schichten wird im Folgenden kurz beschrieben.

### 3.2.1 YBCO-Schicht

Bei der Herstellung von YBCO-Schichten wird mit einer Heizertemperatur von 790°C und einem definierten Sauerstoffpartialdruck gearbeitet. Die Beschichtung dauert 7min bei einer Laserfrequenz von 5Hz. Die Abkühlung der Schichten erfolgt mittels einer Automatik, welche als Rampe programmiert ist und eine Abkühlrate von 1°C pro Sekunde aufweist. Die Vakuumkammer wird im Rahmen der Probenkühlung mit Sauerstoff geflutet, sodass innerhalb dieser Vakuumkammer ein Druck von 800mbar herrscht.

### 3.2.2 Gold-Schicht

Die Herstellung der Au-Schicht findet unter Raumtemperatur statt. Die Laserfrequenz beträgt 10Hz. Die Laserleistung besitzt dabei die gleiche Intensität wie bei der YBCO-Schichtabscheidung. Hier ist kein definierter Sauerstoffpartialdruck eingestellt. Abhängig von der Laserleistung findet eine definierte Goldabscheidung statt. Diese wird anhand der Goldabscheiderate ermittelt, sodass je nach gewünschter Goldschichtdicke eine unterschiedliche Beschichtungsdauer notwendig ist.

Die Funktion der aufgetragenen Goldschicht hängt von deren Position ab. Liegt sie oberhalb der YBCO-Schicht, wird eine leichtere Ankontaktierung für die  $T_C$ -Messung ermöglicht und bietet zusätzlich mechanischen Halt.

Liegt die Au-Schicht zwischen Substrat und YBCO-Schicht, beeinflusst sie die Herstellung der YBCO-Schicht. Bei dieser Verwendung als „Template-Schicht“ bilden sich beispielsweise homogenere Schichten aus und die Dropletanzahl verringert sich. Zusätzlich sind Goldnanocluster an der YBCO-Schichtoberseite zu identifizieren.

#### 3.2.2.1 Strukturierung

Für alle Untersuchungen ist eine genaue Kenntnis der Au-Abscheiderate notwendig. Aus diesem Grund wurde diese anhand von 24 Proben mit der Bezeichnung „2ga...“ bestimmt. Die Abscheidedauer lag bei 2min. Dabei werden die 5mm\*10mm\*1mm Siliziumsubstrate im Reinraum dem Prozess der Fotolithografie unterzogen. Es handelt sich hierbei um ein Mikrostrukturierungsverfahren, bei dem Lackstrukturen mittels Belichtung auf ein Substrat übertragen werden. Das Substrat wird flächig mit einer Fotolackschicht überzogen und mit einer Maske abgedeckt. Die anschließende Beleuchtung mit idealerweise parallelem Licht bewirkt an ungeschützten Stellen eine Quervernetzung von den im Lack enthaltenen Molekülketten.

Die Anwendung kann im Positivprozess oder im Negativprozess erfolgen. Beim Positivprozess entfernt ein spezieller Entwickler die Quervernetzungen, sodass die Substratoberfläche nur mit unbelichtetem Lackanteil abgedeckt ist. Mittels

Probenaufheizung und anschließender Flutbelichtung werden die ursprünglich exponierten Stellen unempfindlich gegenüber dem Entwickler und es bildet sich ein Negativbild der Maske auf dem Substrat ab.

Nach Beschichten der Lackstruktur werden der restliche Lack sowie die darauf befindliche Schicht im Acetonbad abgelöst. Dieser Vorgang wird als Lift-Off bezeichnet. Daran schließt sich eine Reinigung im Acetonbad mit Ultraschallunterstützung an, um Lackreste vollständig zu entfernen. Nach Abspülen des Acetons und Reinigung der Probe durch Isopropanol im Ultraschallbad wird die fertig strukturierte Probe mit Druckluft trocken geblasen. Das Ergebnis ist eine mikrostrukturierte Oberfläche, deren Kantenhöhe per AFM ausgemessen wird. Dabei ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen der Höhe (y) und der angelegten Laserenergie (x) mit der Gleichung  $y = a + b \cdot x$ . Hierbei besteht lediglich die Bedingung, dass die angelegte Laserleistung oberhalb der Ablationsschwelle (40mJ) liegt oder die Abscheidedauer entsprechend groß ist. Aus der Geradengleichung wird schließlich die Goldabscheiderate pro Minute errechnet. Diese ist abhängig von der Laserleistung.

### **3.3 Probenanalytik**

In Rahmen der Arbeit durchlaufen alle Proben die Untersuchungen in nachfolgender Reihenfolge.

#### **3.3.1 Mikroskopie / Visuelle Kontrolle**

Alle Substrate werden unter dem Mikroskop „Jenatech Inspection“ der Firma Carl Zeiss Jena betrachtet, um sicherzustellen, dass eine optimal gereinigte Substratoberfläche für die Schichterzeugung gewährleistet ist und dass sich keine Vorschädigung auf der Substratoberfläche befindet.

Nach Beendigung der Schichterzeugung werden die fertigen Proben mit dem bloßen Auge und unter dem Mikroskop angesehen. Zu erkennen ist die erzeugte Schicht auf dem Substrat mit vereinzelter Dropletbildung. Aufgrund der niedrigen Vergrößerung (1000fach) des Mikroskops lassen sich nur grobe Rückschlüsse auf die Qualität der erzeugten Schicht treffen. Diese werden in anschließenden Untersuchungsmethoden exakt bestimmt.

#### **3.3.2 Ermittlung der Sprungtemperatur**

Für die Messungen der Sprungtemperaturen wird ein Messaufbau verwendet, der über eine Vierpunktmessung von Spannung und Strom die Bestimmung des Widerstandes ermöglicht. Die Probe wird hierbei über vier Druckkontakte mit dem Messstab

„Multi II“ elektrisch leitend verbunden. Der Messstab wird anschließend über einen Schrittmotor mit definierter Geschwindigkeit in eine Kanne mit flüssigem Stickstoff eingefahren. Über den im Messstab eingebauten Thermosensor „PT100“ wird die Temperatur aufgenommen. Die Datenausgabe der Temperatur- und Widerstandsmessungen erfolgt mittels einer Software. Die Werte werden anschließend in das Computerprogramm Origin 8 übertragen und ausgewertet. Abbildung 7 zeigt die schematische Darstellung einer derartigen Auswertung. Jeder aufgenommene Messpunkt wird in der Messkurve einzeln dargestellt und der Sprungbereich linear interpoliert. Der Schnittpunkt der sich ergebenden Gerade mit der x-Achse liefert schließlich die Sprungtemperatur. Die Messung jeder Probe erfolgt doppelt, indem die Daten für die Messrichtung sowohl aufwärts als auch abwärts aufgenommen werden. In dieser Arbeit werden die  $T_C$ -Werte beider Messrichtung gemittelt und als Endwert ausgegeben. Der hier verwendete Messaufbau hat einen absoluten Fehlerwert  $\Delta T = 1\text{K}$ . Das Messsystem ist kalibriert, jedoch nicht geeicht. Bei optimal gewählten Bedingungen ergibt sich eine Sprungtemperatur von  $\pm 1\text{K}$ .

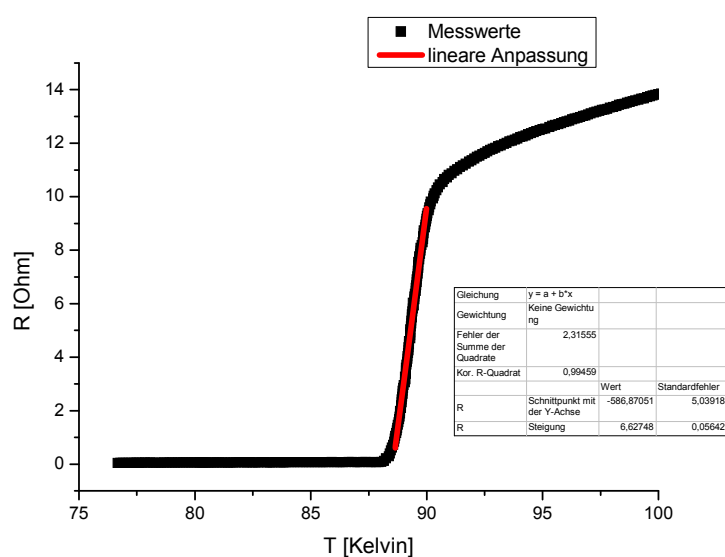


Abbildung 7: schematische Darstellung der Sprungtemperaturmessung am Beispiel von Probe 2YA043 aufwärts gemessen

Bei der eigentlichen Messung wird mit einem Messstrom von  $100\mu\text{A}$  gearbeitet. Das Intervall für die Schrittgeschwindigkeit liegt unabhängig von der Messrichtung bei allen Proben zwischen  $0,005\text{m/h}$  und  $0,01\text{m/h}$ . Bei der Abwärts-Messrichtung wird die Messung erst nach 10minütiger Pause begonnen, nachdem die Probe in die Stickstoffkanne eingetaucht ist. Somit hat das System Zeit für einen thermischen Ausgleich und eine Verfälschung der aufzunehmenden  $T_C$ -Messwerte wird verhindert.

Die jeweiligen Messungen werden beendet, wenn die Temperatur des flüssigen Stickstoffs erreicht ist.

### 3.3.3 Röntgendiffraktometrie

Die Untersuchungen mittels Röntgenstrahlung zur Strukturanalyse erfolgten am IOQ in Jena. Die Intensität eines Reflexes ist abhängig vom Abstand zwischen Probe und Detektor. Daher muss sichergestellt werden, dass dieser Abstand während eines Scans konstant bleibt. Der verwendete Aufbau der Röntgenröhre ist in Abbildung 8 schematisch dargestellt. Die verwendeten schmalen Blenden haben einen Öffnungswinkel von  $0,22^\circ$ .

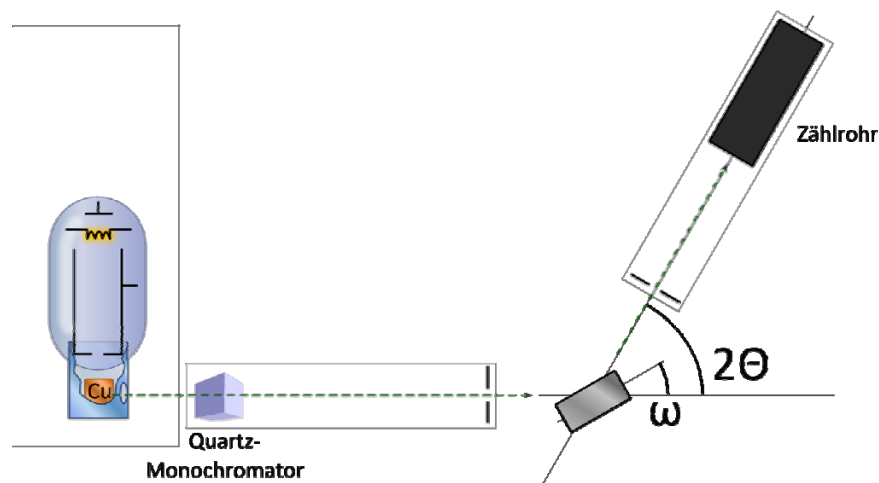


Abbildung 8: schematische Darstellung der Röntgenanordnung

#### 3.3.3.1 Omega Scan ( $\omega$ -Scan)

Zur Bestimmung wird der Detektor ( $2\theta$ ) auf das Maximum des (005)YBCO-Peaks fixiert. Die Probe wird dann um einen Winkel ( $\omega$ ) gedreht. Je größer die einkristallinen Gebiete innerhalb der Schicht sind, desto schmaler muss der Peak in seiner Halbwertsbreite sein. Die Halbwertsbreite (FWHM) dient somit als Gütekriterium für die Verteilung der Normalenvektoren innerhalb der Schicht.

#### 3.3.3.2 Rocking - Kurve ( $\omega$ - $2\theta$ -Scan)

Die Strukturaufklärung in dünnen Schichten wird in dieser Arbeit mit Hilfe eines  $\omega$ - $2\theta$ -Scans durchgeführt. Nach der Ausrichtung am (005)YBCO-Peakmaximum für den Detektor ( $2\theta$ ) und die Probe ( $\omega$ ) erfolgt ein Relativscan. Hierbei verändert sich  $\omega$  und  $2\theta$  in Verhältnis 1:2. Es werden nur Netzebenen detektiert, die parallel zueinander liegen. Bei einkristallinen bzw. epitaktischen Proben konzentriert sich die gesamte Intensität punktuell. Die Güte der Orientierung wird mit Hilfe der Halbwertsbreite aus den Rocking-Kurven bestimmt.



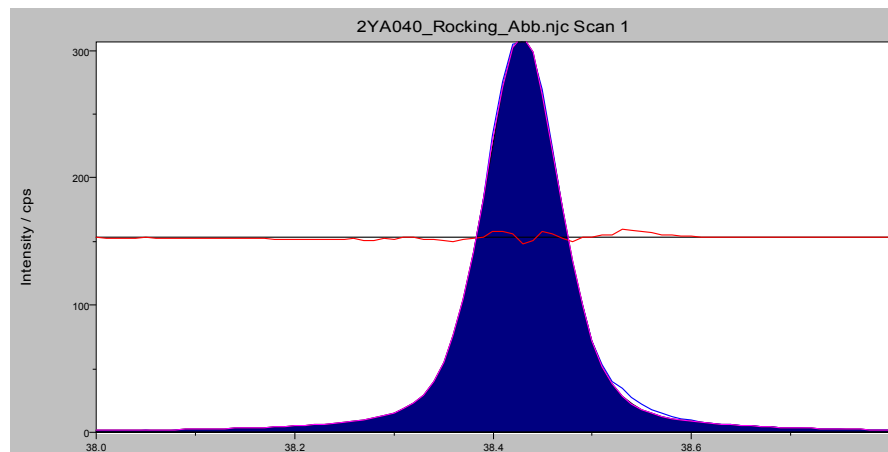


Abbildung 9: Bestimmung von FWHM an Probe 2ya040 mit gefitteter Fläche (blau) und einer Messabweichung (rote Linie)

### 3.3.4 Atomkraftmikroskopie (AFM)

Das AFM System „Nanosurf easyScan2“ am Institut für Festkörperphysik aus der AG Tieftemperatur wird verwendet um Aussagen über die Rauigkeit der Probenoberfläche zu erhalten und die Goldabscheiderate zu ermitteln. Die Aufnahmen werden im Modus „non-contact dynamic force“ angefertigt und anschließend mit der freien Software Gwyddion 2.9 ausgemessen. Hierzu wird das Bild einer Reihe von Korrekturschritten unterzogen. Zuerst erfolgt eine Off-Set Abgleichung per Höhenanpassung des Median in z-Richtung. Daran schließt sich eine Facetten-Nivelierung und ein Zeilenabgleich an. Abschließend wird noch eine Fehlzeilenkorrektur abgewendet um messtechnische Ausreißer ausschließen zu können.

Das aufbereitete Bild steht nun weiteren Untersuchungen zur Verfügung. Diese sind neben der Rauigkeitsbestimmung auch die Auswertung von den Goldnanoclustern in Bezug auf Anzahl und Größenverteilung. Dazu werden Schwellwert-Algorithmen genutzt um einzelne Partikel oder Flächen zu markieren. Die daraus angewählten Bereiche werden in einer Maske zusammengefasst und ausgewertet.

### 3.3.5 Rasterelektronenmikroskopie (REM)

Untersuchungen mittels REM wurden am Otto-Schott-Institut in Jena durchgeführt. Zur Elektronenerzeugung im Rasterelektronenmikroskop „JSF 7001F“ aus dem Hause Joel wird ein thermischer Feldemitter (Schottky-Emitter) genutzt. Dafür werden eine Beschleunigungsspannung von 15kV und ein Strahlstrom von  $0,8\mu\text{A}$  verwendet. Für Bilder und EDX-Messung beträgt der Arbeitsabstand 15mm. In der Probenkammer herrscht ein Druck von etwa  $9 \cdot 10^{-5} \text{Pa}$ . Die Analyse der qualitativen Probenzusammensetzung erfolgt punktuell mittels EDX-Analyse.

Bevor die Proben im REM untersucht werden können, ist eine Bedampfung notwendig. Zum Prozess des Bedampfens wird die Maschine „Auto 306“ mit Kohlefaserverdampfungszusatz aus dem Hause Edwards eingesetzt. Ziel dieser Bedampfung ist die Beschichtung von REM-Präparaten zur Erzeugung eines elektrisch leitfähigen Belages mit einer hohen Röntgenstrahldurchlässigkeit. Um eine spätere Ladungsableitung und eine erhöhte Leitfähigkeit zu gewährleisten, werden die Probenstücke an der Oberfläche mit einer leitenden Kohlenstoff-Schicht versehen. Dabei kommt ein angespitzter Kohlestift zum Einsatz. Dieser wird in eine Vakuumkammer eingebaut, in der ein Druck unter  $10^{-6}$  mbar vorherrscht. Die Entgasung des Kohlestiftes erfolgt durch Anlegung eines Stromes über 10s.

## 4 Messergebnisse und Diskussion

### 4.1 Optimierung von Anlage 2

#### 4.1.1 Parametervariation

Im Rahmen der Arbeit soll eine im Vergleich zur Anlage 1 qualitativ gleichwertige Schichtenerzeugung mit Anlage 2 realisiert werden. Ein Qualitätskriterium ist hierbei die Sprungtemperatur. Je höher diese ist, desto besser ist die Schichtqualität. Ab einem  $T_C$ -Wert oberhalb von 90K wird die YBCO-Schicht als gut bewertet. Um eine optimale Parametereinstellung für die Schichterzeugung zu finden, werden in dieser Arbeit verschiedene Parametervariationen vorgenommen. Dabei handelt es sich um folgende Parameter:

- Targetauswahl
- Heizertemperatur ( $T_H$ )
- Sauerstoffpartialdruck ( $P_{O_2}$ )
- Laserenergie ( $E_L$ )

##### 4.1.1.1 Targetauswahl

Der Arbeitsgruppe stehen fünf verschiedene Targets zur Verfügung. Diese haben je nach Hersteller verschiedene Qualitäten, sodass zu Beginn der Untersuchung eine Auswahl des Targets getroffen werden musste. Laut Hersteller wiesen alle Targets die gleiche Stöchiometrie auf. Ferner wird eine Targetdichte bezogen auf die optimale Dichte des Einkristalls angegeben. Allerdings wird vom Hersteller nicht garantiert, dass sich die Targets für eine Laserablation eignen.

Jede YBCO-Schicht der Targets wird bei einem Sauerstoffdruck von 30Pa und einer Heizertemperatur von  $790^\circ\text{C}$  erzeugt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 zusammengefasst. Basierend auf der Sprungtemperatur werden die Targets ausgewählt. Target A weist mit 85,1K die niedrigste Sprungtemperatur auf und wird daher ausgeschlossen. Mit Target E wird der höchste  $T_C$ -Wert erreicht. Bei gleicher Laserleistung (65mJ) zeigt sich, dass Target B vergleichsweise höhere Sprungtemperaturen liefert als Target C. Aus diesem Grund wird Target C ausgeschlossen. In der Gegenüberstellung von Target B und Target D zeigt sich, dass die Sprungtemperatur von Target B zwar 0,5K über der von Target D liegt, die eingesetzte Laserleistung allerdings 15mJ höher ist. Zudem weist die Oberfläche von

Target B aufgrund von PLD Inhomogenitäten auf, sodass schließlich Target B in weiteren Untersuchungen nicht mehr berücksichtigt wird.

Aus den oben dargestellten Vergleichen wird ersichtlich, dass die Ergebnisse von Target D und Target E für die weitere Parametervariation am vielversprechendsten sind. In beiden Targets wird schon bei relativ geringer Laserleistung eine sehr hohe Sprungtemperatur erzielt. In Rahmen dieser Arbeit werden beide Targets für anstehende Untersuchungen verwendet.

*Tabelle 2: Zusammenfassung verschiedener Proben mit unterschiedlichem Target bei konstantem Druck von 30Pa*

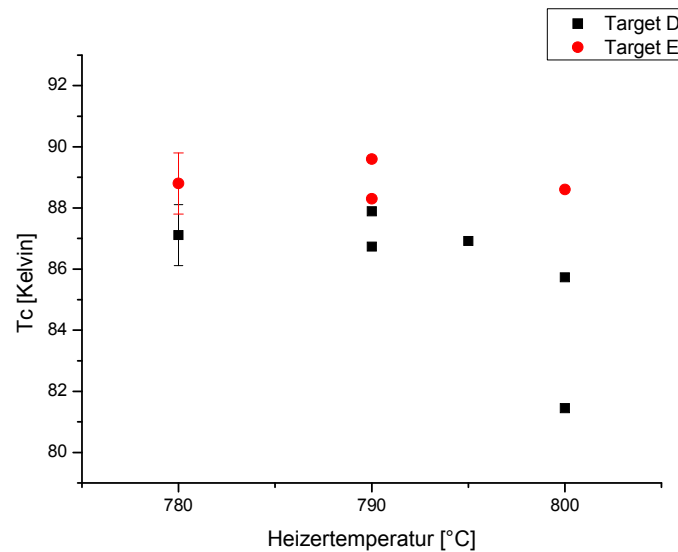
Target	Heizertemperatur $T_H$ in [°C]	Sprungtemperatur $T_C$ in [Kelvin]	Laserleistung $E_L$ in [mJ]	Probenname
A	785	85,1	64	2ya002
	795	85,1	58	2ya003
B	790	88,4	65	2ya008
C	790	87,1	65	2ya009
D	790	87,9	50	2ya010
E	790	89,2	60	2ya011

#### 4.1.1.2 Heizertemperatur ( $T_H$ )

Der zweite Schwerpunkt der Parametervariation ist die Veränderung der Heizertemperatur. Eine entsprechende Versuchsreihe wird an beiden Targets mit veränderter Heizertemperatur aufgenommen und ist in Abbildung 10 dargestellt. Es soll der Einfluss von  $T_H$  auf die Sprungtemperatur überprüft werden. Bildet sich ein optimales  $T_H$  heraus oder ist keine Abhängigkeit zu beobachten?

Für Target D wird mit einem konstanten Sauerstoffpartialdruck von 30Pa gearbeitet. Die Laserleistung schwankt zwischen 50mJ bis 72mJ. Die maximal gemessene Sprungtemperatur im Rahmen der Temperaturvariation liegt bei 790°C. Es konnten keine höheren  $T_C$ -Werte in den Proben gemessen werden.

Für Target E wird der Sauerstoffpartialdruck auf 35Pa fixiert. Die Laserleistung liegt zwischen 44mJ und 75mJ. Es kristallisiert sich analog zu Target D eine optimale Heizertemperatur von 790°C heraus.



*Abbildung 10: Einfluss auf Heizertemperatur bei konstantem Sauerstoffdruck von 30Pa an Target D und 35Pa an Target E*

Der Einfluss des Parameters Heizertemperatur wird in den Versuchsreihen an Target D und Target E aufgezeigt. Das Optimum der gemessenen Sprungtemperaturen liegt für beide Targets bei einer Heizertemperatur von 790°C. In vorangegangenen Untersuchungen der Arbeitsgruppe zeigte sich, dass eine leichte Verbesserung der kristallografischen und supraleitenden Eigenschaften durch Erhöhung der Heizertemperatur möglich ist [1]. In den Untersuchungen der vorliegenden Arbeit wird die Sprungtemperatur nur marginal durch die Heizertemperatur beeinflusst. Bei Target A werden sogar gleiche  $T_C$ -Werte von 85,1K erzielt auch wenn sich  $T_H$  voneinander unterscheidet (Tabelle 2). Es ergibt sich die Schlussfolgerung, dass die Heizertemperatur in der gesamten Versuchsreihe konstant auf 790°C festgelegt werden kann. Dieser Parameter ist relativ unkritisch, weil  $T_H$  gut einstellbar ist.

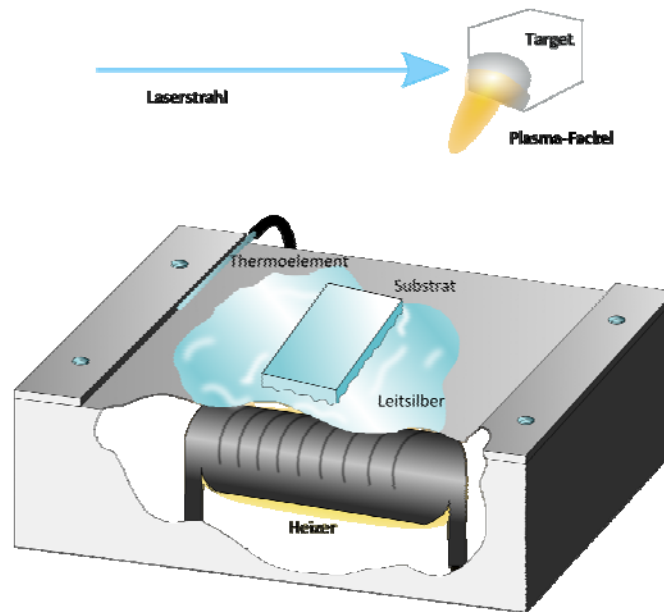


Abbildung 11: schematische Darstellung des Heizers

Die Bestimmung der Heizertemperatur erfolgt über ein an der Heizplatte angeklebtes Thermoelement. Eine optimale Vorbereitung der Substrate ist notwendig, damit die  $T_C$ -Messung eine Aussage über die Temperatur auf der Substratoberfläche liefert. Diese Substrattemperatur entspricht nicht der Heizertemperatur, weil sie von der gleichmäßigen Erwärmung des Substrates abhängig ist. Eine schematische Darstellung für den Aufbau des Heizers ist in Abbildung 11 zu sehen.

#### 4.1.1.3 Sauerstoffpartialdruck ( $P_{O_2}$ )

Nachdem die Einflüsse der Heizertemperatur und des Targets geklärt sind, wird nun der Sauerstoffdruck bzw. Sauerstoffpartialdruck genauer untersucht. Dazu liegt  $T_H$  bei  $790^\circ\text{C}$ , der Sauerstoffpartialdruck wird bei Verwendung von Target D und Target E variiert. In vorangegangenen Untersuchungen der Arbeitsgruppe hat sich ebenfalls gezeigt, dass eine leichte Verbesserung der kristallografischen und supraleitenden Eigenschaften auch durch Erhöhung des Sauerstoffpartialdrucks möglich ist [1]. Aus Abbildung 12 geht hervor, dass die gemessenen  $T_C$ -Werte für beide Targets mindestens einen Sauerstoffpartialdruck von  $30\text{Pa}$  benötigen. Für Target D liegt das Maximum bei eben diesen  $30\text{Pa}$  und wird im Rahmen der Messversuche nicht mehr überschritten.

Die Variation des Sauerstoffpartialdrucks führt zu verringerten Sprungtemperaturen. Ursache dafür ist die veränderte Abscheiderate vom YBCO. Es wird mit einer konstanten Abscheidedauer von  $7\text{min}$  gearbeitet. Die Druckveränderung wirkt sich auf die Form der Plasmafackel aus. Diese verkleinert sich und beeinflusst somit die Dicke der aufwachsenden Schicht. Ebenso wirkt sich die Fackelgeometrie negativ auf die Homogenität der Schicht aus, weil dies zu veränderten Abscheideraten von YBCO

führt. In der vorliegenden Arbeit wird allerdings nicht genauer auf die Veränderung der Plasmafackelgeometrie eingegangen.

Bei Target E ist zu beobachten, dass sich bei einem Druck von 30Pa kein Maximum ausbildet. Es zeigt sich ein Plateaus mit annähernd gleichen Sprungtemperaturen um 90K im Bereich von 30Pa bis zu 100Pa.

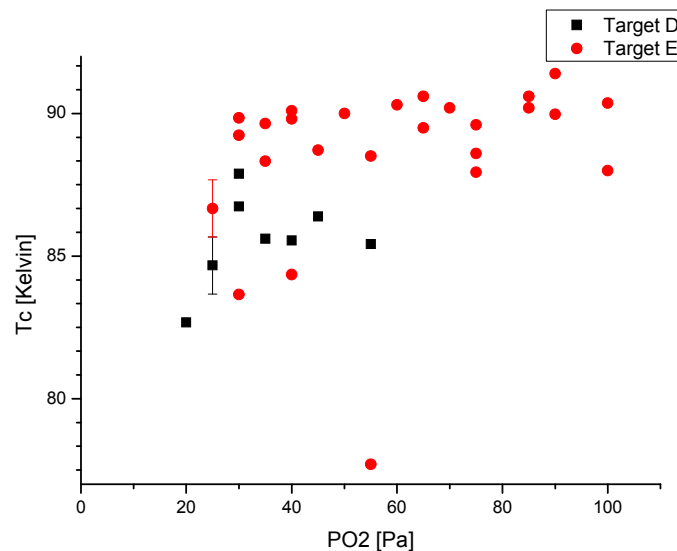


Abbildung 12: erzielte  $T_C$ -Werte bei einer Heizertemperatur vom 790°C durch Variation des Sauerstoffdrucks von 10Pa bis 100Pa an verschiedenen Targets

Zusammenfassend ergibt sich, dass für die Schichterzeugung mindestens ein Druck von 30Pa in der Probenkammer herrschen sollte, um Schichten mit Sprungtemperaturen von 90K zu erreichen.

Aus der Versuchsreihe dieser Arbeit ist nicht ersichtlich, welche  $T_C$ -Werte sich ergeben, wenn der Sauerstoffpartialdruck weiter erhöht wird. Das Maximum der Sprungtemperatur bleibt unklar. Hierzu sind weitere Untersuchungen notwendig. Es wird vermutet, dass keine weitere  $T_C$ -Steigerung stattfindet.

#### 4.1.1.4 Kalibrierungsmessung von $E_L$

Der vierte Parameter zur Optimierung von Anlage 2 ist die Laserenergie bzw. Laserleistung. Im Rahmen bisheriger Versuchsreihen wurde die Laserleistung nur nach Beendigung der Schichterzeugung gemessen, wodurch im Vorfeld keine Aussagen zu dessen Einfluss möglich waren. Durch Positionierung bestimmter Messpunkte im Strahlengang des Lasers und einer gezielten Messung der Laserleistung (Abbildung 13) konnte diese nun bereits vor Schichterzeugung grob eingestellt werden. Es ermöglicht eine Vorabjustierung der gewünschten Laserenergie, die mittels Absorber bequem nachreguliert werden kann.

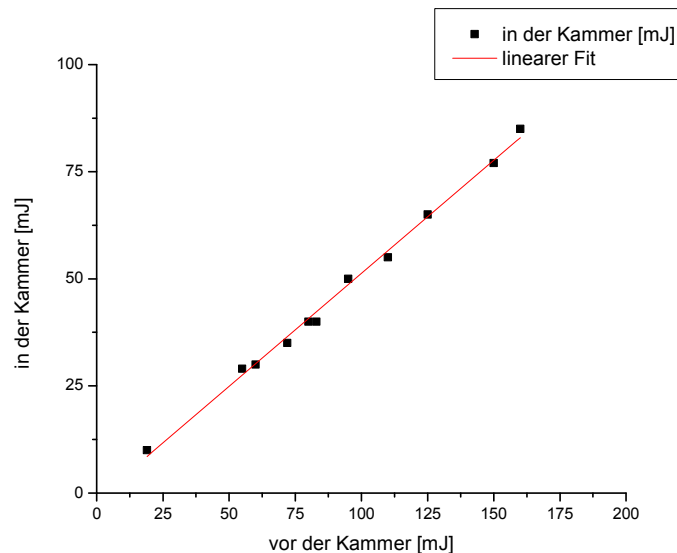


Abbildung 13: aufgenommene Laserleistung vor und nach der Probenkammer

#### 4.1.2 Resultate der Parametervariation

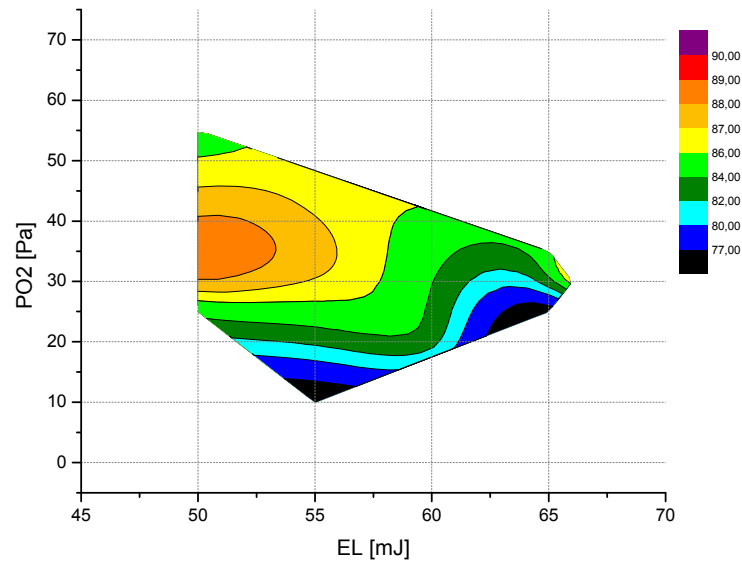
Die Veränderung der oben genannten Parameter wirkt sich auf die Schichteigenschaften aus. Basierend auf den Voruntersuchungen sollen im Folgenden der Einfluss der vier Parameter auf die Sprungtemperatur, die Rauigkeit und auf die Halbwertsbreite geklärt werden.

##### 4.1.2.1 Sprungtemperaturen ( $T_C$ -Werte)

Nach Variation von  $T_H$  liegt ein Schwerpunkt der Untersuchung auf der Klärung der Beeinflussung von  $P_{O_2}$  und  $E_L$  auf die Sprungtemperatur ( $T_C$ ). Die optimale Heizertemperatur liegt bei  $790^\circ\text{C}$  und hat einen relativ geringen Einfluss auf  $T_C$ . Die gemessenen  $R(T)$ -Kurven weisen zunächst ein metallähnliches Widerstandsverhalten in Form einer abfallenden Widerstandsgeraden auf. Beim Unterschreiten der Umwandlungstemperatur erfolgt der Übergang in die supraleitende Phase.

Abbildung 14 zeigt die  $T_C$ -Werte in Abhängigkeit des Sauerstoffpartialdrucks und der aufgenommenen Laserleistung für Target D mit einer konstanten Heizertemperatur von  $790^\circ\text{C}$ . Für moderate Sprungtemperaturen um  $\sim 85\text{K}$  ist ein Mindest-Sauerstoffpartialdruck von  $30\text{Pa}$  notwendig. Darüber hinaus ist der Einfluss der Laserleistung auf die gemessenen  $T_C$ -Werte ersichtlich. Optimale Sprungtemperaturen werden mit Target D im Arbeitsbereich mit einem Druck um  $35\text{Pa}$  und einer mittleren Laserleistung von  $50\text{mJ}$  bis  $55\text{mJ}$  erzielt.





*Abbildung 14: flächig aufgetragene Sprungtemperaturen an Target D bei Veränderung vom Sauerstoffpartialdruck und der Laserenergie mit konstanter Heizertemperatur bei 790°C*

Bei Versuchen an Target E treten unterschiedliche Parameterkombinationen auf, die zu Sprungtemperaturen um 90K führen. In Abbildung 15 werden die Messergebnisse grafisch dargestellt. Zum einen ist zu erkennen, dass analog zum Target D ein Minimum an Sauerstoffpartialdruck notwendig ist, um qualitativ gute Schichten zu erzeugen. Ferner lässt sich nicht pauschal sagen, welche Kombination aus Laserleistung und Druck die Optimale ist, um gute  $T_C$ -Werte oberhalb von 90K zu erreichen. Mögliche Kombinationen sind:

- niedrige Laserleistung und hoher Sauerstoffpartialdruck
- mittlere Laserleistung und geringe Sauerstoffpartialdruck
- hohe Laserleistung und hoher Sauerstoffpartialdruck.

Aus dieser Verteilung zeigt sich, dass die Laserleistung eher eine untergeordnete Rolle in der Beeinflussung der Sprungtemperatur besitzt. Aus der Untersuchung geht hervor, dass ein Mindestdruck von 30Pa notwendig ist, egal ob Target D oder Target E zum Einsatz kommt. Die Laserenergie hingegen ist für YBCO-Schichten über 90K in dem untersuchten Bereich sekundär.

Die Probe 2ya050 weist in Rahmen der gesamten Versuchsreihe die höchste Sprungtemperatur auf. Sie liegt bei 91,4K.

Auffällig in Abbildung 15 ist, dass es im Gebiet (EL: 60-80mJ, PO2: 45-100Pa) zu Messabweichungen von einem Plateau kommt. Trotz des durch die Messanordnung

bedingten Fehlers  $\Delta T = 1\text{K}$  kommt es lokal zu verringerten Sprungtemperaturen. Das kalibrierte, aber nicht geeichte Messsystem weist bei den gewählten Bedingungen größere Abweichungen der Sprungtemperaturen als  $\pm 1\text{K}$ . Hierfür sind unterschiedliche Ursachen denkbar.

Erstens können die Schichten bei der Herstellung in ihrem  $T_C$ -Wert reduziert sein. Es wird vermutet, dass die Fixierung mittels Leitsilber hierfür verantwortlich sein könnte. Erfolgt keine vollständige und flächige Verteilung des Leitsilbers, wird das Substrat nicht homogen und gleichmäßig aufgeheizt. Dies könnte sich negativ auf die Sprungtemperatur auswirken. Ebenso spielt hier die Geometrie der Plasmafackel eine Rolle, die in der vorliegenden Arbeit allerdings nicht untersucht wird.

Zweitens sind auch Messfehler denkbar. Diese können als mögliche Ursache für die lokalen Diskrepanzen der  $T_C$ -Werte im Messlayout begründet sein. Ein Nachteil dieser Messmethode liegt im Einbau der Proben. Die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse wird erschwert. Aufgrund der Geometrie ist es schwierig bereits vermessene Proben erneut an der gleichen Stelle zu kontaktieren. Die Absolutwerte der gemessenen Widerstände sind somit nur bedingt aussagekräftig. Dennoch wird diese Methode zur Bestimmung der Sprungtemperaturen eingesetzt. Zudem birgt der Kontakt an sich eine Fehlerquelle, da die vier Druckkontakte nicht gleichartig sind.

Die Verwendung eines neuen festen Probenhalters am Messstab würde zu vergleichbaren und einheitlichen Messergebnissen führen. Bei der bis dato genutzten Drahtaufhängung kann es in jeder Messung zu einer anderen Positionierung der Probe durch Verkippen oder Drehen kommen.

Die 4-Punkt-Messung findet am Rand der Probenoberfläche statt. Somit bleibt ein großer Bereich in der Mitte des Substrats komplett unberührt von möglichen Presskontakten. Nachfolgende Untersuchungen an der Probe sind dadurch im ursprünglichen Zustand ohne eingefügte Oberflächendefekte oder Arbeitsspuren möglich.

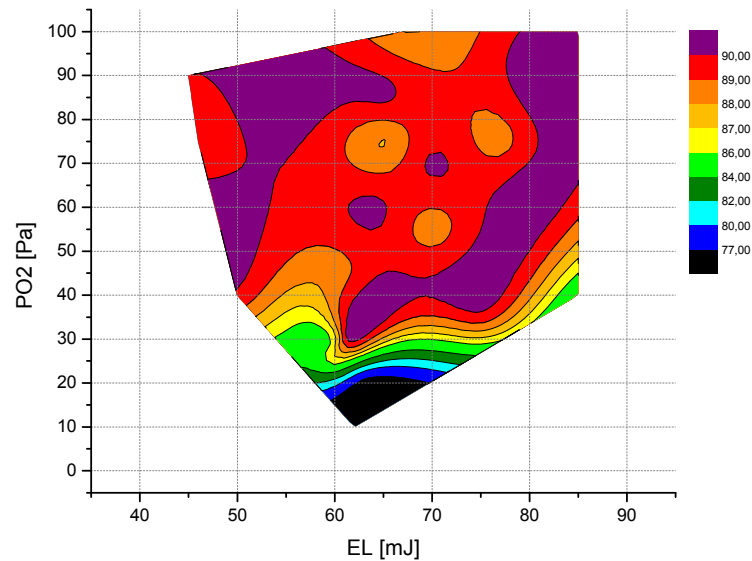


Abbildung 15: mit Target E erzielten  $T_C$  -Werte und deren Variation von Sauerstoffpartialdruck und Laserleistung bei 790°C Heizertemperatur

#### 4.1.2.2 Rauigkeit ( $R_{ms}$ )

Im Rahmen der Rauigkeitsbestimmung an den Proben wird das AFM genutzt, um die quadratisch gemittelte Rauigkeit ( $R_{ms}$ ) und die durchschnittliche Rauigkeit ( $R_a$ ) zu ermitteln. Beide Werte sind abhängig von der Laserleistung und von dem Sauerstoffpartialdruck. In Abbildung 17 ist ersichtlich, dass bei einer Erhöhung der Laserleistung die Rauigkeit zunimmt. Ferner geht eine Steigerung von  $E_L$  mit einer zunehmenden Streuung der Messergebnisse von  $R_{ms}$  einher.

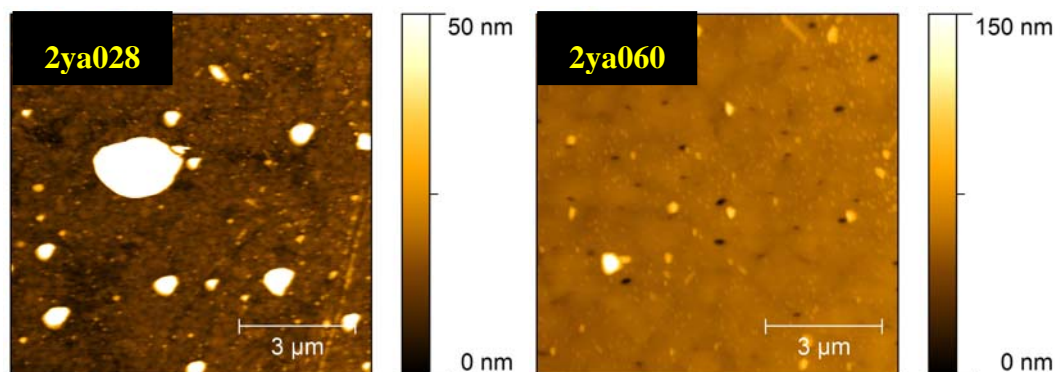


Abbildung 16: zwei AFM-Aufnahmen unterschiedlicher Proben und Parametern

2ya028:  $P_{O_2} = 40\text{Pa}$ ,  $E_L = 57\text{mJ}$ ,  $T_C = 89,7\text{K}$ ,  $R_{ms} = 3,9\text{nm}$

2ya060:  $P_{O_2} = 30\text{Pa}$ ,  $E_L = 60\text{mJ}$ ,  $T_C = 83,7\text{K}$ ,  $R_{ms} = 4,3\text{nm}$

Dieser Zusammenhang ist auch für den Sauerstoffdruck erkennbar. Abbildung 18 zeigt, welchen Einfluss die Laserleistung und der Sauerstoffdruck auf  $R_{ms}$  haben. Daraus ergibt sich die optimale Kombination für Schichten mit möglichst geringer Rauigkeit. Die Laserleistung sollte zwischen 50mJ und 60mJ liegen. Gleichzeitig darf der

Sauerstoffpartialdruck von 40 Pa nicht überschritten werden, wenn der Schwerpunkt auf glatte Schichten gelegt wird.

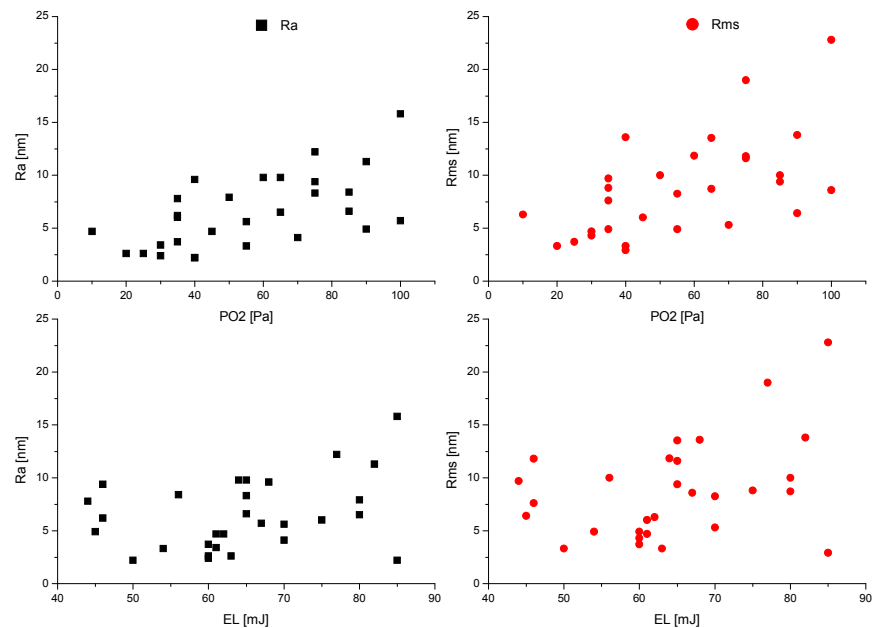


Abbildung 17: Einfluss von Laserleistung und Sauerstoffpartialdruck auf  $R_a$  (links) und  $R_{ms}$  (rechts)

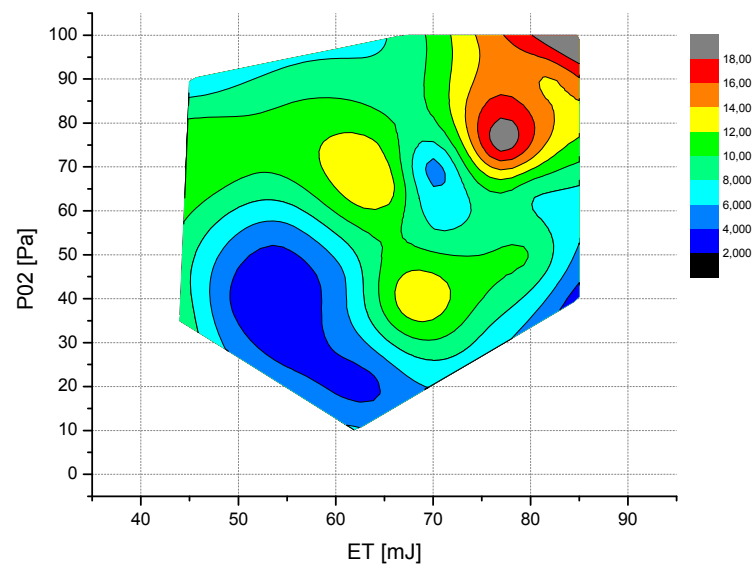


Abbildung 18: Darstellung von  $R_{ms}$  und der Einfluss von Laserleistung und Sauerstoffpartialdruck in den Proben 2ya026 bis 2ya057

#### 4.1.2.3 Rockingkurven

Aufgrund eines langfristigen Defekts an der Röntgenröhre in IOQ wurde auf weitere Auswertungen der Röntgenergebnisse verzichtet. An dieser Stelle wird in der Arbeit lediglich der Einfluss der Halbwertsbreite auf die Sprungtemperatur betrachtet.

Als Kriterium für eine gute kristallografische Ausrichtung der supraleitenden Schicht wird die Halbwertsbreite (FWHM) des (005) YBCO-Peaks ausgemessen. Je kleiner dabei dieser Wert ist, desto besser ist die Schicht orientiert. Die Halbwertsbreite ist ein Maß für die Out-of-plane Orientierung in der Einheitszelle. Die jeweilige Sprungtemperatur der Probe wird in Abbildung 19 über die resultierende Halbwertsbreite abgetragen. Die rote Markierung zeigt die Halbwertsbreiten der Proben, die für anschließende Untersuchungen mit Goldclustern gewählt wurden. Exakte Messwerte sind im Anhang in Tabelle 6 nachzulesen. Eine Aussage zur Schichtqualität ist nur begrenzt möglich. An dieser Stelle müssen  $J_C$ -Messungen ansetzen um genauere Aussagen über die Qualität treffen zu können. Es ergibt sich jedoch ein Trend für die Schichtqualität. Je kleiner die Halbwertsbreite aus den Rockingkurven, desto wahrscheinlicher ist eine gute Sprungtemperatur.

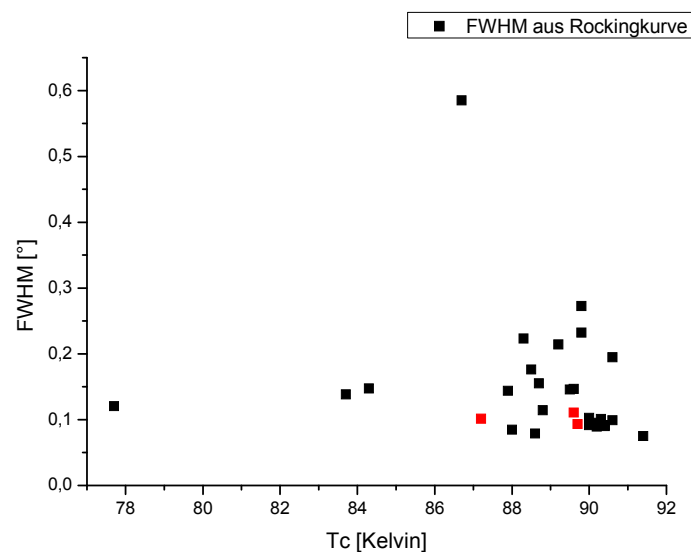


Abbildung 19: gemessene Halbwertsbreiten (FWHM) aus den Rockingkurven über deren Sprungtemperaturen von Probe 2ya025 bis einschließlich 2ya061 mit Vergleichsproben für Untersuchungen mit Au-Nanoclustern (rot)

## 4.2 Untersuchung mit Goldnanopartikeln

Für die Untersuchungen des YBCO-Wachstums mit Gold-Nanopartikeln ist es notwendig die Abscheiderate für das von der YBCO-Schicht abgeschiedene Gold zu bestimmen. In Kapitel 3.2.2 wird die Durchführung beschrieben. Durch die ermittelte Abscheiderate des Goldes ist es möglich, die Dicke der „Template-Schicht“ zu justieren. Diese Schicht befindet sich auf dem Substrat (STO) und unterhalb der YBCO-Schicht. Dabei sollte die Au-Schichtdicke bis zu 20nm variieren, um den Einfluss auf das YBCO-Wachstum zu untersuchen. Anhand von Voruntersuchungen wurden folgende Parameter für die YBCO-Schicht festgelegt:

- Sauerstoffpartialdruck ( $P_{O_2}$ ) = 40Pa
- Laserenergie ( $E_L$ ) = 55mJ bis 60mJ

Die oben genannte Kombination wurde gewählt, um glatte YBCO-Schichten mit einer Rauigkeit von unter 4nm herzustellen. Die Sprungtemperatur der Schicht wird aufgrund der ausgewählten Parameter im Bereich von 89K erwartet.

Mittels Fotolithografie und anschließendem Lift-Off ergeben sich mikrostrukturierte Probenoberflächen. Diese werden mit Aceton und Isopropanol im Ultraschallbad gereinigt und per AFM vermessen. Die Abbildung 20 zeigt die ermittelte Kantenhöhe des Goldes auf dem Substrat. Es ergibt sich für die Goldabscheiderate ein linearer Zusammenhang zwischen Laserenergie und Kantenhöhe. In Tabelle 3 sind die Abscheideraten entsprechend der Laserleistung zusammengefasst.

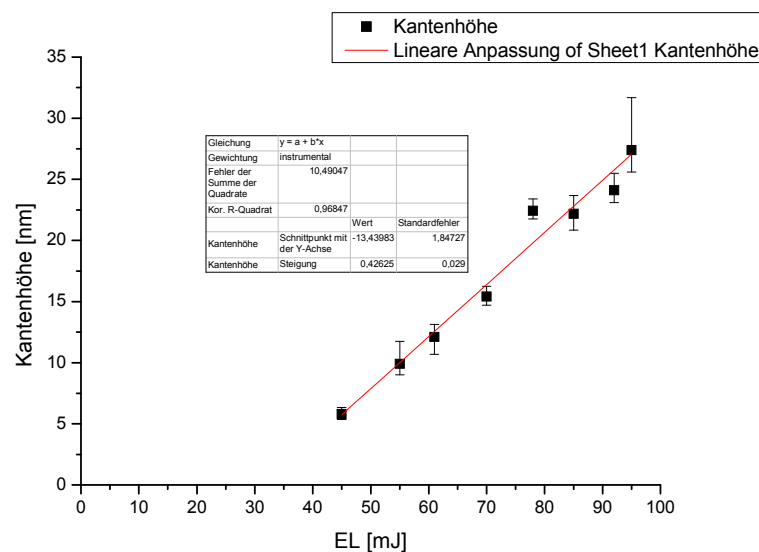


Abbildung 20: Bestimmung der Goldabscheiderate bei  $f=10\text{Hz}$  und  $t=2\text{min}$  und der daraus resultierenden Rate abhängig von der Laserleistung

Tabelle 3: resultierende Goldabscheideraten basierend auf Abbildung 20

Laserleistung $E_L$ in [mJ]	Dicke in [nm] aus Abbildung 20 bei 2min	resultierende Rate in [nm/min]
40	3,62017	2
50	7,88517	4
60	12,15017	6
70	16,41517	8
80	20,68017	10
90	24,94517	12

#### 4.2.1 Resultate

Bei den Untersuchungen der YBCO-Schichten mit Goldnanoteilchen wird mit einer Laserleistung von 55mJ-60mJ gearbeitet. Die Goldabscheiderate nimmt einen Wert von 6nm/min an. Basierend auf den Abscheideraten wird begonnen, die Goldschichtdicke zu verändern. Es werden nochmals drei Vergleichsproben ohne eine „Template-Schicht“ und anschließend jeweils zwei Proben mit zunehmender Au-Dicke von 1nm bis zu 20nm erzeugt. Dabei sind sämtliche Parameter innerhalb des Prozesses konstant, d.h. es wird mit Target E bei einer Heizertemperatur von 790°C gearbeitet, die Laserleistung liegt zwischen 55mJ bis 60mJ und der Sauerstoffpartialdruck beträgt 40Pa. Der einzige Unterschied unter den Proben besteht in der Dicke der „Template-Schicht“, die bei Raumtemperatur aufgetragen wird.

Aus vorangegangenen Untersuchungen [1] der Arbeitsgruppe ist bekannt, dass sich der Einsatz von Goldpartikeln in Form einer Nährschicht positiv auf die Strukturierung und die Steigerung der Ausbeute auswirkt. Mittels lift-off Verfahren können die Goldpartikel gezielt an den Kontaktflächen eingestellt werden. Dabei verschlechtert sich die Kristallstruktur und die supraleitenden Eigenschaften nur unwesentlich [36].

##### 4.2.1.1 Sprungtemperaturen ( $T_C$ -Werte)

Bei der gewählten Parameterkombination wird die Sprungtemperatur bei ~89K vermutet. Als Referenzmessung werden drei Proben ohne Gold unter gleichen Bedingungen hergestellt. Die Sprungtemperaturen weisen eine Abhängigkeit von der Goldschichtdicke auf (Abbildung 21). Dabei ist zu sehen, dass sich sämtliche Schichten mit ihren Sprungtemperaturen um den vorhergesagten Wert von 89K bewegen. Das Vorhandensein von Goldpartikeln erhöht sogar den  $T_C$ -Wert auf teilweise >90K. Als Ausreißer nach unten ist das Ergebnis der Probe 2ya058 zu nennen, die einen  $T_C$ -Wert

von 87,2K aufweist. Vermutlich kam es hier wieder zu Problemen beim homogenen Aufheizen der Probe, da sich das Leitsilber nicht komplett flächig unter dem Substrat ausgebreitet hat. Dies führt zu einer inhomogenen Aufheizung und erklärt die verminderte Sprungtemperatur.

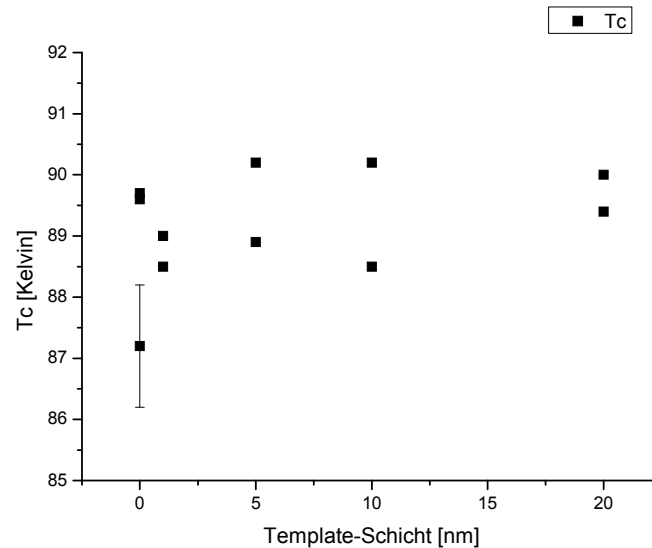


Abbildung 21: Sprungtemperaturen mit veränderter Template-Schichtdicke

#### 4.2.1.2 Rauigkeit ( $R_{ms}$ )

Die Rauigkeitswerte ( $R_{ms}$ ) der Schichten sollen laut Voruntersuchungen unter 4nm liegen. Die Abbildung 22 zeigt die gemessene Rauigkeit in Abhängigkeit der Template-Schichtdicke. Je stärker der Anteil der Goldpartikel ist, desto größere Rauigkeiten werden erzielt. Die Ursache ist in den REM-Bilder besser zu sehen (Abbildung 26). Die ermittelte Rauigkeit beinhaltet Ausscheidungen und gebildete Cluster, sodass es schwierig ist eine reine Oberflächenrauigkeit der YBCO-Schicht zu messen. Darum liegen die  $R_{ms}$ -Werte auch deutlich über der erwarteten Rauigkeit von 4nm.



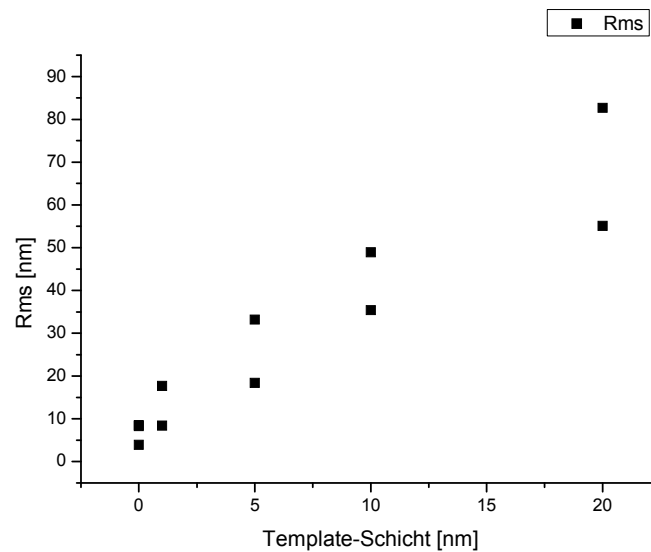


Abbildung 22: Rauigkeit mit steigender Dicke der Template-Schicht

#### 4.2.1.3 Halbwertsbreite (FWHM)

Um den Einfluss der Goldnanopartikel auf das Wachstum der YBCO-Schicht zu klären, werden Proben mit unterschiedlicher Goldschichtdicke röntgendiffraktometrisch untersucht. Die Auswertung der jeweiligen Rocking-Kurven in Abhängigkeit von der Goldschichtdicke zeigt Abbildung 23. Hierbei wird deutlich, dass die Goldschichtdicke zu einer Verringerung der Halbwertsbreiten in den Rocking-Kurven führt. Aus Kapitel 4.2.1.1 ist bekannt, dass die Sprungtemperaturen leicht gesteigert werden können und es somit zu einer leichten Verbesserung der supraleitenden Eigenschaften dieser Schichten kommt. Durch die Realisierung der geringen Halbwertsbreiten liegt für die Schichten mit Goldnanopartikeln eine gute out-of-plane-Orientierung im untersuchten Bereich bis 20nm Golddicke vor. Daraus ergibt sich eine epitaktische Beziehung zwischen der YBCO-Schicht und den Goldnanopartikeln.

Frühere Untersuchungen der Arbeitsgruppe weisen auf eine Erhöhung der Halbwertsbreite hin, wenn die Goldschichtdicke zunimmt [4]. Dies kann in meinen Untersuchungen nicht bestätigt werden. Vermutlich liegt die Ursache für die Messabweichungen in der Verwendung anderer Blenden, was sich negativ auf die gemessenen FWHM-Werte auswirkt. Zudem unterscheiden sich die Startwerte der Halbwertsbreite und das verwendete Parameterfeld an sich. Der FWHM-Startwert in dieser Arbeit liegt um  $0,100^\circ$ . Bei einer 10nm dicken Goldschicht wurde eine Halbwertsbreite von  $0,273^\circ$  realisiert. In der vorliegenden Untersuchung liegt der FWHM-Wert bei  $0,116^\circ$ .

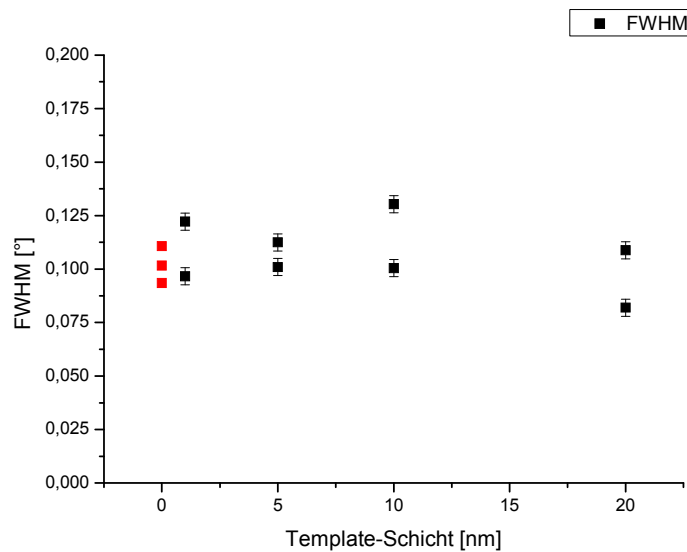


Abbildung 23: Einfluss der Template-Schicht auf die Halbwertsbreite und die Vergleichsproben ohne Gold (rot)

#### 4.2.1.4 Rasterelektronenmikroskopie (REM)

Die Untersuchungen mittels REM werden am Otto-Schott-Institut in Jena durchgeführt. Die Elektronenerzeugung im Rasterelektronenmikroskop „JSF 7001F“ aus dem Hause Joel erfolgt durch einen thermischen Feldemitter (Schottky-Emitter). Dafür werden eine Beschleunigungsspannung von 15kV und ein Strahlstrom von  $0,8\mu\text{A}$  als Parameter verwendet. Für Bilder und EDX-Messung beträgt der Arbeitsabstand 15mm. Die Analyse der qualitativen Probenzusammensetzung erfolgt unter Zuhilfenahme der EDX-Analyse.

Abbildung 24 zeigt die Zusammensetzung ohne Goldpartikel. Aufgrund der geringen Schichtdicke kann neben den Bestandteilen der Schicht zusätzlich das Substrat detektiert werden. Die Anregungsbirne der EDX-Messung hat eine ungefähre Eindringtiefe von  $2\mu\text{m}$ .

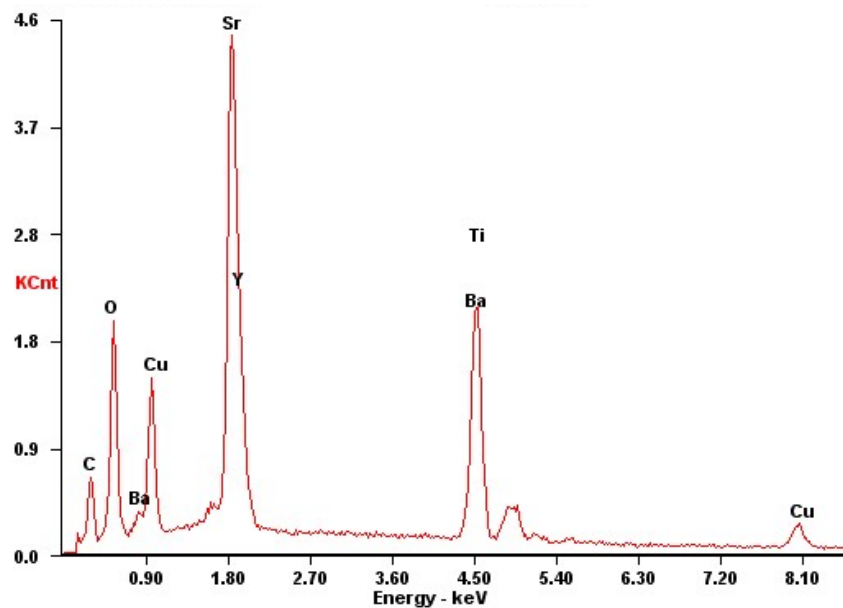


Abbildung 24: EDX-Messung an Probe 2ya058

Im Rahmen der Untersuchung zu Wachstumsverhalten mit Goldnanoclustern wird die Dicke der „Template-Schicht“ von 1nm bis auf 20nm gesteigert. Das Ergebnis ist eine Ausbildung von Goldausscheidungen und eine Clusterbildung auf der Probenoberfläche. Das Gold diffundiert aus der „Template-Schicht“ durch die YBCO-Schicht und bildet darauf Ausscheidungen. Diese wachsen abhängig von der Dicke der „Template-Schicht“ zu Au-Clustern zusammen. Je dicker die Au-Schicht, desto größer werden die Cluster.

Abbildung 26 zeigt die Proben bei 2000facher und 10000facher Vergrößerung. Die Oberfläche der reinen YBCO-Schicht ist geprägt durch das Vorhandensein von Löchern und vereinzelter Ausscheidung. Ebenso sind Droplets sehr gut zu erkennen. Wird nun die „Template-Schicht“ unter die YBCO-Schicht gebracht, so wirkt sich dies auf das Wachstum der Schicht aus. Die Löcher verschwinden vollständig und auch die Ausscheidungen scheinen weniger zu werden. Es bilden sich Keime bzw. Goldausscheidungen an der Oberfläche der YBCO-Schicht. Per EDX-Punktmessung wird das Vorhandensein solcher Goldausscheidungen nachgewiesen (Abbildung 27). Der Bereich zwischen den Keimen ist im Vergleich zur reinen YBCO-Oberfläche wesentlich homogener und weist auch keine Störstellen auf. Über den Goldanteil innerhalb der Schicht lassen sich keine Aussagen treffen. An dieser Stelle ist der Einsatz von TEM notwendig.

Abbildung 25 zeigt weitere wichtige Aspekte. Zum einen nimmt die Anzahl der Keime und Ausscheidungen ab, wenn sich der Goldanteil erhöht. Ebenso wird die Dropletbildung minimiert. Des Weiteren verringert sich die durchschnittliche Größe der Teilchen bis zu einer Goldschichtdicke von 5nm. Wird diese überschritten, kommt es

zum Zusammenschluss und Größenzunahme der Teilchen. Auch in Voruntersuchungen der Arbeitsgruppe konnten diese Beziehung bestätigt werden [3]. Zudem stützt auch das Verhältnis von Länge zur Breite diesen Zusammenhang. Liegt dieses bei 1,0 wird ein energetisch optimaler Kugelzustand erreicht. Im Rahmen der Versuchsreihe wird dieser Wert nicht erreicht. Bei 5nm „Template-Schichtdicke“ wird ein Wert von 1,174 realisiert.

Die der Clusterbildung zugrunde liegenden Prozesse konnten im Rahmen dieser Arbeit nicht umfassend untersucht werden. Aufgrund der bisherigen Ergebnisse wird jedoch angenommen, dass sich das Gold zunächst während des YBCO-Wachstums in der entstehenden Schicht löst. Aus dieser Lösung bilden sich vorwiegend an der Oberfläche erste Goldpartikel, da hier eine hohe Dichte von Keimzentren vorliegt. Im Folgenden kommt es zu einer Vergrößerung der Partikel. Die Geschwindigkeit dieser Prozesse hängt sehr stark von der Temperatur, vom Abstand zwischen den Partikeln und vom Unterschied der Partikelgrößen zu Beginn des Vergrößerungsprozesses ab. Vermutlich besteht eine Abhängigkeit zwischen der Größenverteilung und der Abscheidedauer der YBCO-Ablation. Ab einer „Template-Schichtdicke“ von 5nm scheint die Vergrößerung deutlich schneller abzulaufen, als bei geringeren Dicken.

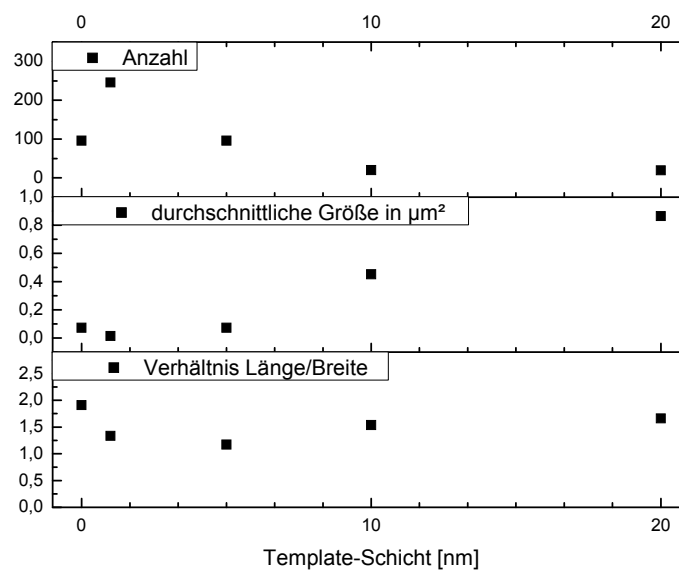


Abbildung 25: statistische Ausmessung der Bilder mit 10000facher Vergrößerung

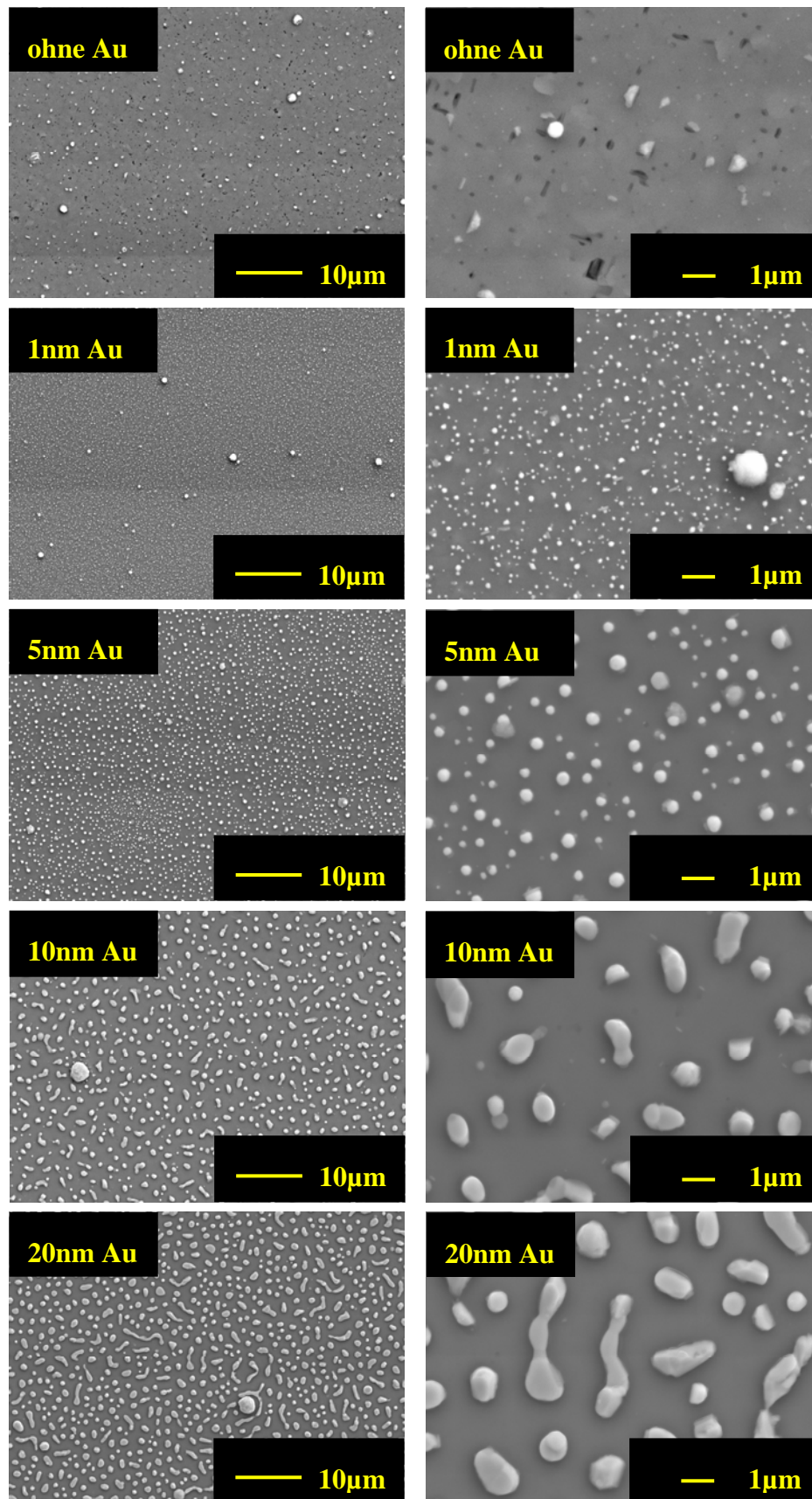


Abbildung 26: Aufnahme mit unterschiedlicher Goldschichtdicke bei 2000facher Vergrößerung (links) und 10000facher Vergrößerung (rechts)

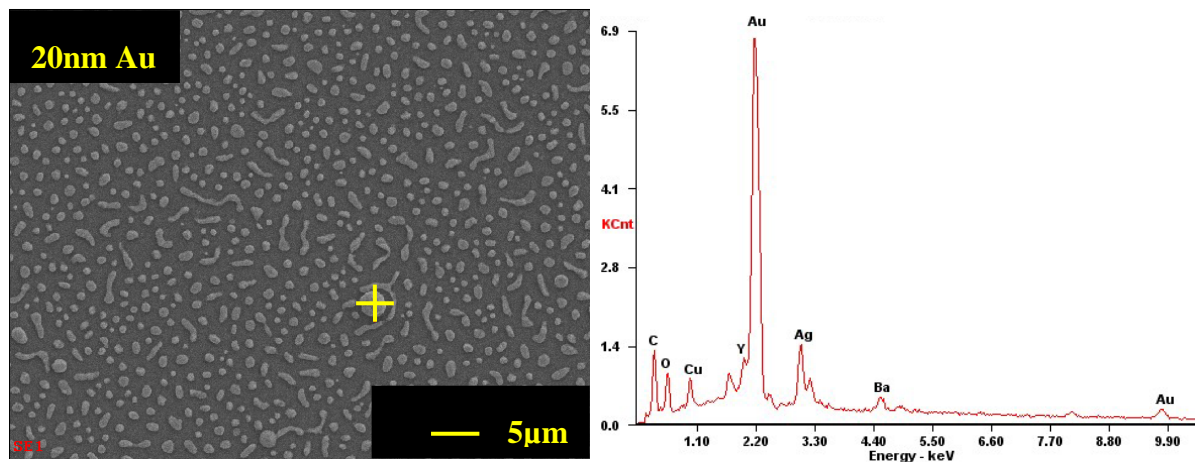


Abbildung 27: 2ya068 mit EDX-Punktmessung auf einem Goldnanopartikel

## 5 Zusammenfassung

Ziel der Arbeit war es, eine Anlage zur lasergestützten Abscheidung von YBCO-Schichten hinsichtlich unterschiedlicher Abscheideparameter so zu optimieren, dass die Abscheidung von YBCO-Schichten mit Sprungtemperaturen von 90K mit hoher Reproduzierbarkeit an Anlage 2 realisiert werden. Zudem wurden Untersuchungen zum Wachstumsverhalten von YBCO-Schichten mit Goldnanoclustern angefertigt. Der Einfluss verschiedener Parameterkombinationen wurde in der vorliegenden Arbeit ausführlich diskutiert. Bei den Parametern handelt es sich um die Targetauswahl, die Heizertemperatur, die Laserleistung sowie den Sauerstoffpartialdruck. Die Kombination aus den genannten Parametern beeinflusst das Schichtwachstum und deren Eigenschaften.

Von den fünf zur Verfügung stehenden Targets wurden Target D und Target E für die weiteren Untersuchungen verwendet. In beiden Targets wurde bei relativ geringer Laserleistung eine gute Sprungtemperatur erzielt. An ihnen wurde der Einfluss von der Laserleistung, der Heizertemperatur und des Sauerstoffpartialdrucks auf die Sprungtemperatur, die Rauigkeit und auf die Halbwertsbreite aufgeklärt. Aus den Versuchen geht hervor, dass die Sprungtemperatur nur minimal von der Heizertemperatur beeinflusst wird. Für beide Targets liegt die optimale  $T_H$  bei  $790^\circ\text{C}$ . Der Zusammenhang zwischen Laserleistung beziehungsweise Sauerstoffpartialdruck und supraleitenden Eigenschaften ( $T_C$ ,  $J_C$ ) ist noch nicht völlig geklärt. Die Ergebnisse weisen aber darauf hin, dass bei der Herstellung von Schichten mit einer Sprungtemperatur über 90K ein Mindestsauerstoffdruck von 30Pa notwendig ist. Sobald diese Drücke eingestellt werden, spielt die Laserleistung in Bezug zur Sprungtemperatur eine untergeordnete Rolle. Ein Vergleich der resultierenden Rauigkeiten zeigt, dass geringere Drücke eine Oberfläche mit geringer Rauigkeit zur Folge haben. Die Laserleistung hingegen wirkt sich negativ auf die Schichtrauigkeit aus. Je höher  $E_L$  ist, desto rauer wird die aufwachsende Schicht.

Die Kombination aus geringer  $R_{ms}$  und moderatem  $T_C$ -Wert wird für den zweiten inhaltlichen Schwerpunkt dieser Arbeit genutzt. Hierbei handelt es sich um Schichtwachstumsuntersuchungen mit Goldnanoclustern. Dabei werden dünne Au-Schichten als eine „Template-Schicht“ zwischen Substrat und YBCO-Schicht positioniert. Es wird mit einem Sauerstoffpartialdruck von 40Pa und einer Laserleistung von 50mJ bis 60mJ gearbeitet. Die Sprungtemperatur wird bei rund 89K und die Rauigkeit ( $R_{ms}$ ) unter 4nm erwartet. Die Dicke der Goldschicht wurde in der vorliegenden Arbeit von 1nm bis zu 20nm variiert. Es ergaben sich Sprungtemperaturen

um 90K. Die Rauigkeiten liegen jedoch deutlich oberhalb der Erwartungswerte. Je stärker der Goldanteil, desto höhere Rauigkeiten werden gemessen. Ursache dafür sind Goldausscheidungen an der Oberfläche, die sich weiter ausdehnen und zu Goldnanoclustern zusammenwachsen. Auf den REM-Bildern ist zu sehen, dass der Bereich zwischen den Clustern eine deutlich verminderte Oberflächenrauigkeit aufweist. Diese Gebiete müssen noch genauer untersucht werden.

Zusammenfassend ist zu sagen, dass die Optimierung von Anlage 2 gelungen ist. Zu Beginn der vorliegenden Arbeit lagen die gemessenen Sprungtemperaturen noch unter 77K und konnten im Verlauf der Arbeit auf über 90K gesteigert werden. Die höchste gemessene Sprungtemperatur wurde in Probe 2ya050 mit 91,4K erzielt. Ferner ist die Reproduzierbarkeit von Schichten mit  $T_C$ -Werten über 90K bei verschiedenen Parametern geglückt. Die Untersuchungen zum Schichtwachstum mit Goldnanoclustern konnten erfolgreich durchgeführt werden und weisen erste viel versprechende Ergebnisse für weitere Grundlagenforschungen auf.



## **6 Ausblick**

### **6.1 Verbesserungsmöglichkeiten**

Im Rahmen der Versuchsdurchführung sind einige Fehlerquellen zu benennen. Ein elementares Problem liegt in der Verwendung des Leitsilbers. Die homogene Durchheizung der Probe basiert auf einer gleichmäßigen Auftragung des Leitsilbers auf der Heizplatte. Die einheitliche Verteilung ist Grundvoraussetzung für eine hohe Sprungtemperatur.

Zudem kann die Sprungtemperaturmessung an sich verbessert werden. Die Verwendung eines neuen festen Probenhalters am Messstab würde zu vergleichbaren und einheitlichen Messergebnissen führen. Bei der bis dato genutzten Drahtaufhängung kann es in jeder Messung zu einer anderen Positionierung der Probe durch Verkippen oder Drehen kommen. Mit einer fixen Metallaufhängung werden Abweichungen vermieden und dadurch eine Reproduzierbarkeit der Ergebnisse ermöglicht.

Ferner bietet die Anordnung der Vierpunktmessung im Messstab Optimierungspotential. Bisher sind die Proben in Messrichtung und idealerweise senkrecht zum Füllstand des flüssigen Stickstoffs positioniert. Dies bewirkt stets die Messung eines Sprungtemperaturgradienten, der innerhalb der Probe existiert. Würde die Probe parallel zur Oberfläche des Stickstoffs in der Kanne liegen, existiert dieser Gradient nicht mehr. Das Ergebnis wäre demzufolge eine reine Punktmessung der Sprungtemperatur.

### **6.2 Weiterführende Untersuchungen**

Als weitere Untersuchungen der YBCO-Schichten wäre die Bestimmung der kritischen Stromdichte denkbar.

Ebenso müssen TEM-Untersuchungen an den bisherigen Ergebnisstand anknüpfen. Aus den bisherigen Untersuchungen ist nicht geklärt, wie die Verteilung der Goldpartikel innerhalb der YBCO-Schicht aussieht. Interessant wäre beispielsweise wie viel der ursprünglichen „Template-Schicht“ noch direkt auf dem Substrat liegt oder ob das gesamte Gold durch die YBCO-Schicht diffundiert ist.

## Literaturverzeichnis

1. Große, V., *Ladungsträgertransport in epitaktischen Strontiumtitanat-Schichten für den Einsatz in supraleitenden Bauelementen (Dissertation)*. 2010: Jena.
2. Schuegraf, K.K., *Handbook of Thin-Film Deposition Processes and Techniques: principles, methods, equipment and applications*. 1988, Park Ridge, New York: Noyes Publications.
3. Christke, S., *Herstellung von YBCO-Schichten mit Au-Clustern und deren Untersuchung mittels Rasterelektronenmikroskopie (Studienarbeit)*. 2010: Jena.
4. Häßler, J., *Herstellung von YBCO-Schichten mit Au-Clustern und deren Untersuchung mittels Röntgendiffraktometrie (Studienarbeit)*. 2010: Jena.
5. Linzen, S., *Epitaxie von  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  - und Pufferschichten auf Siliziumsubstraten zur Herstellung supraleitender kryoelektronischer Bauelemente (Dissertation)*. 2000: Jena.
6. Ferchland, L., *Untersuchungen zum Wachstum und zur Passivierung von dünnen Schichten aus Hochtemperatur-Supraleitern für die Anwendung bei Sensorbauelementen (Dissertation)*. 2000: Jena.
7. Smith, H.M. and A.F. Turner, *Vacuum Deposited Thin Films Using a Ruby Laser*. Applied Optics, 1965. **4**(1): p. 147-148.
8. Dijkkamp, D., et al., *Preparation of Y-Ba-Cu oxide superconductor thin films using pulsed laser evaporation from high  $T_c$  bulk material*. Applied Physics Letters, 1987. **51**(8): p. 619-621.
9. Champeaux, C., et al., *Plasma formation from laser-target interaction; Basic phenomena and applications to superconducting thin film deposition*, in *Laser Ablation of Electronic Materials, Basic Mechanism and Applications*, E. Fogarassy and S. Lazare, Editors. 1992, Elsevier Science Publishers B.V. p. 141-165.
10. Inam, A., et al., *Pulsed laser etching of high- $T_c$  superconducting films*. Applied Physics Letters, 1987. **51**(14): p. 1112-1114.
11. Chrisey, D.B. and G.K. Hubler, *Pulsed Laser Deposition of thin films*. 1994, New York: John Wiley & Sons Inc.
12. Boffa, V., et al., *High-quality surface YBCO thin films prepared by off-axis pulsed laser deposition technique*. Physica C: Superconductivity, 1997. **276**(3-4): p. 218-224.
13. Holzapfel, B., et al., *Off-axis laser deposition of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  thin films*. Applied Physics Letters, 1992. **61**(26): p. 3178-3180.
14. Schmidt, F., *Entwicklung eines integrierten Hochtemperatursupraleiter-Hall-Magnetometers (Dissertation)*. 2003: Jena.
15. Greer, J.A., *In situ growth of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  thin films on three-inch wafers using laser ablation and an atomic oxygen source in Superconductivity and*

- Applications* H.S. Kwok, Y.H. Kao, and D.T. Shaw, Editors. 1989: New York. p. 117-126.
16. Stranski, L.N. and L. Krastanov, *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander* in *Sitzungsbericht der Akademie der Wissenschaft, Math. -naturwiss. Kl. IIB*, 146. 1938: Wien.
  17. *High-TC thin-films. Growth Modes – Structure – Applications*, in *Materials and crystallographic aspects of HTC-superconductivity*, J. Mannhart, et al., Editors. 1994, Kluwer Academic Publishing. p. 453-470.
  18. Zheng, X.Y., et al., *Early stages of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> epitaxial growth on MgO and SrTiO<sub>3</sub>*. *Physical Review B*, 1992. **45**(13): p. 7584-7587.
  19. Hazen, R.M., *Perovskite*. *Spektrum der Wissenschaft*, 1988. **8**: p. 42-50.
  20. Wellstood, F.C., J.J. Kingston, and J. Clarke, *Thin-film multilayer interconnect technology for YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>*. *Journal of Applied Physics*, 1994. **75**(2): p. 683-702.
  21. Cao, L., E. Sozontov, and J. Zegenhagen, *Cubic to Tetragonal Phase Transition of SrTiO<sub>3</sub> under Epitaxial Stress: An X-Ray Backscattering Study*. *physica status solidi (a)*, 2000. **181**(2): p. 387-404.
  22. Wyckoff, R.W.G., *Crystal Structures*. 2 ed. Vol. 2. 1964, New York: Interscience.
  23. *Modern Physics of Ferroelectrics: Essential Background*, in *Physics of Ferroelectrics – A Modern Perspective.*, K.M. Rabe, et al., Editors. 2007, Springer Verlag: Berlin, Heidelberg. p. 1-30.
  24. Goldschmidt, V.M., *Gesetze der Kristallochemie*, in *Naturwissenschaften*. 1926. p. 477-485.
  25. Woodward, P., *Octahedral Tilting in Perovskites. II. Structure Stabilizing Forces*. *Acta Crystallographica Section B*, 1997. **53**(1): p. 44-66.
  26. Beyers, R. and T.M. Shaw, *The Structure of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> and its Derivatives*, in *Solid State Physics*. 1989, Academic Press. p. 135-212.
  27. Jorgensen, J.D., et al., *Structural properties of oxygen-deficient YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>*. *Physical Review B*, 1990. **41**(4): p. 1863-1877.
  28. Hazen, R.M., et al., *Crystallographic description of phases in the Y-Ba-Cu-O superconductor*. *Physical Review B*, 1987. **35**(13): p. 7238-7241.
  29. Jorgensen, J.D., et al., *Oxygen ordering and the orthorhombic-to-tetragonal phase transition in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>*. *Physical Review B*, 1987. **36**(7): p. 3608-3616.
  30. Poulsen, H.F., et al., *Relation between superconducting transition temperature and oxygen ordering in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub>*. *Nature*, 1991. **349**(6310): p. 594-596.
  31. Chromik, S., et al., *High-Tc Y-Ba-Cu-O thin-films on Si substrates*. *Journal of Applied Physics* 1989. **66**(3): p. 1477-1480.
  32. Matthee, T., *Heteroepitaxie oxidischer Schichten auf Silizium (001) als Diffusionsbarrieren für Hochtemperatursupraleiter (Dissertation)*. 1994: Augsburg.

33. Hahn, R., et al., *Deposition of noble metal contacts on  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  thin films*. IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 1993. **3**(1): p. 2979-2982.
34. Katsutoshi, O. and I. Takeo, *Contact Resistance of Several Metals on  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$* . Japanese Journal of Applied Physics, 1992. **31**(1): p. 2689-2691.
35. Armster, D., *Untersuchungen zur Passivierung und Kontaktierung von HTSL-Bauelementen auf Silizium (Staatsexamensarbeit)*. 1999: Jena.
36. Große, V., et al., *Formation of gold nano-particles during pulsed laser deposition of  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  thin films*. physica status solidi (RRL) – Rapid Research Letters, 2010. **4**(5-6): p. 97-99.

## Anhang A: Messwerte im Überblick

### A.1 Voruntersuchungen

Tabelle 4: Messergebnisse zu Voruntersuchungen ohne konstante Parameter

Name	verwendetes Target	Druck $p_0$ in [Pa]	Sauerstoffpartialdruck $p_{O_2}$ in [Pa]	Heiztemperatur $T_H$ in [°C]	eingestellte $E_L$ am Laser in [mJ]	Absorber	Frequenz in [Hz]	Zeit in [min]	$E_L$ in [mJ]	$T_C$ in [Kelvin]
2ya001	A	$2,2 \cdot 10^{-4}$	50	780	800	23	5	7	80	78,9
2ya002	A	$1,6 \cdot 10^{-4}$	30	785	800	23	5	7,5	64	85,1
2ya003	A	$1,6 \cdot 10^{-4}$	30	795	630	20	5	7	58	85,1
2ya004	A	$8,5 \cdot 10^{-5}$	20	815	620	0	5	7	65	<77
2ya005	A	$2,7 \cdot 10^{-4}$	20	795	550	0	5	7	55	78,2
2ya006	A	$4,7 \cdot 10^{-5}$	25	795	540	0	5	7	55	81,5
2ya007	A	$4,5 \cdot 10^{-5}$	25	795	430		5	7	45	78,7
2ya008	B	$2,1 \cdot 10^{-4}$	30	790	800	23	5	7	65	88,4
2ya009	C	$5,1 \cdot 10^{-5}$	30	790	800	23	5	7	65	87,1
2ya010	D	$2,2 \cdot 10^{-4}$	30	790	800	23	5	7	50	87,9
2ya011	E	$5,1 \cdot 10^{-5}$	30	790	800	23	5	7	60	89,2

## A.2 Target D

Tabelle 5: Messergebnisse von Target D ohne konstante Parameter

Name	Druck $p_0$ in [Pa]	Sauerstoffpartialdruck $p_{O_2}$ in [Pa]	Heizertemperatur $T_H$ in [°C]	eingestellte $E_L$ am Laser in [mJ]	Absorber	Frequenz in [Hz]	Zeit in [min]	$E_L$ in [mJ]	$T_C$ in [Kelvin]
2ya012	$9,7 \cdot 10^{-5}$	30	800	800	23	5	7	60	85,7
2ya013	$5,4 \cdot 10^{-5}$	30	795	800	23	5	7	56	86,9
2ya014	$1,8 \cdot 10^{-4}$	30	790	800	23	5	7	66	86,7
2ya015	$4,3 \cdot 10^{-5}$	30	780	800	23	5	7	72	87,1
2ya016	$4,6 \cdot 10^{-5}$	30	800	800	23	5	7	62	81,4
2ya017	$4,1 \cdot 10^{-5}$	10	790	800	23	5	7	55	<77
2ya018	$2,6 \cdot 10^{-4}$	20	790	800	23	5	7	60	82,7
2ya019	$9,9 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	23	5	7	60	85,5
2ya020	$3,1 \cdot 10^{-5}$	45	790	800	23	5	7	56	86,4
2ya021	$4,4 \cdot 10^{-5}$	55	790	800	23	5	7	50	85,4
2ya022	$4,1 \cdot 10^{-5}$	35	790	770	18	5	7	65	85,6
2ya023	$4,8 \cdot 10^{-5}$	25	790	680	18	5	7	65	<77
2ya024	$4,1 \cdot 10^{-5}$	25	790	450	0	5	7	50	84,7

### A.3 Target E

Tabelle 6: Messergebnisse von Target E ohne konstante Parameter

Name	Druck $p_0$ in [Pa]	Sauerstoffpartialdruck $p_{O_2}$ in [Pa]	Heiztemperatur $T_H$ in [°C]	eingestellte $E_L$ am Laser in [mJ]	Absorber	Frequenz in [Hz]	Zeit in [min]	$E_L$ in [mJ]	$T_C$ in [Kelvin]	Halbwertsbreite FWHM in [°]	$R_{ms}$ in [nm]
2ya025	$5,2 \cdot 10^{-5}$	10	790	320	23	5	7	24		kaputt	
2ya026	$1,2 \cdot 10^{-4}$	10	790	800	30	5	7	62	<77	0,1897	6,3
2ya027	$6,9 \cdot 10^{-5}$	20	790	800	30	5	7	63	<77	0,1549	3,3
2ya028	$2,7 \cdot 10^{-5}$	30	790	800	30	5	7	60	83,7	0,1387	4,3
2ya029	$4,7 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	30	5	7	50	89,8	0,2324	3,3
2ya030	$2,5 \cdot 10^{-5}$	25	790	800	30	5	7	60	86,7	0,5849	3,7
2ya031	$4,1 \cdot 10^{-5}$	35	790	800	30	5	7	60	88,3	0,2232	4,9
2ya032	$2,7 \cdot 10^{-5}$	45	790	800	30	5	7	61	88,7	0,1554	6,0
2ya033	$3,3 \cdot 10^{-5}$	55	790	800	30	5	7	54	77,7	0,1206	4,9
2ya034	$2,6 \cdot 10^{-5}$	30	790	800	30	5	7	61	89,8	0,2725	4,7
2ya035	$2,3 \cdot 10^{-5}$	55	790	800	30	5	7	70	88,5	0,1764	8,3
2ya036	$2,2 \cdot 10^{-5}$	35	790	800	30	5	7	70		kaputt	
2ya037	$2,8 \cdot 10^{-5}$	35	790	800	30	5	7	75	89,6	---	8,8
2ya038	$4,2 \cdot 10^{-5}$	75	790	800	15	5	7	65	87,9	0,1437	11,6
2ya039	$3,9 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	10	5	7	85	84,3	0,1473	2,9
2ya040	$2,7 \cdot 10^{-5}$	100	790	800	10	5	7	85	90,4	0,0919	22,8
2ya041	$8,0 \cdot 10^{-5}$	90	790	800	25	5	7	55		kaputt	
2ya042	$3,0 \cdot 10^{-5}$	90	790	800	30	5	7	45	90,0	0,1025	6,4
2ya043	$4,3 \cdot 10^{-5}$	35	800	800	30	5	7	44	88,6	---	9,7
2ya044	$3,5 \cdot 10^{-5}$	35	780	800	30	5	7	46	88,8	0,1142	7,6
2ya045	$1,9 \cdot 10^{-5}$	100	790	800	25	5	7	67	88,0	0,0848	8,6
2ya046	$3,5 \cdot 10^{-5}$	75	790	800	0	5	7	46	89,6	0,1465	11,8
2ya047	$5,9 \cdot 10^{-5}$	85	790	800	20	5	7	56	90,6	0,1949	10
2ya048	$3,2 \cdot 10^{-5}$	50	790	800	15	5	7	80	90,0	0,0919	10

2ya049	$2,2 \cdot 10^{-5}$	70	790	800	20	5	7	70	90,4	0,0901	5,3
2ya050	$2,4 \cdot 10^{-5}$	90	790	800	15	5	7	82	91,4	0,0750	13,8
2ya051	$3,3 \cdot 10^{-5}$	85	790	800	22	5	7	72	kaputt		
2ya052	$6,6 \cdot 10^{-5}$	75	790	800	17	5	7	77	88,6	0,0790	19,0
2ya053	$2,4 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	27	5	7	68	90,1	0,0952	13,6
2ya054	$3,5 \cdot 10^{-5}$	65	790	800	25	5	7	80	90,6	0,0991	8,7
2ya055	$2,9 \cdot 10^{-5}$	65	790	800	30	5	7	65	89,5	0,1458	13,5
2ya056	$2,2 \cdot 10^{-5}$	60	790	800	30	5	7	64	90,3	0,1010	11,9
2ya057	$5,5 \cdot 10^{-5}$	85	790	800	27	5	7	65	90,2	0,0895	9,4



## A.4 Proben zur Goldabscheiderate

Tabelle 7: Messergebnisse zur Goldabscheiderate an Target E

Name	Druck $p_0$ in [Pa]	Material	Raumtemperatur in [°C]	eingestellte $E_L$ am Laser in [mJ]	Absorber	Frequenz in [Hz]	Zeit in [min]	$E_L$ in [mJ]	$R_{ms}$ in [nm]]	Fehler plus in [nm]	Fehler minus in [nm]
2ga001	$6,0 \cdot 10^{-5}$	Au	35	800	25	10	0,5	60	11,0	1,9	3,0
2ga002	$4,2 \cdot 10^{-5}$	Au	41	800	25	10	0,5	45	kaputt		
2ga003	$8,5 \cdot 10^{-5}$	Au	39	800	10	10	0,5	63	4,9	2,4	1,3
2ga004	$9,0 \cdot 10^{-5}$	Au	39	800	0	10	0,5	68	5,1	1,0	0,9
2ga005	$2,0 \cdot 10^{-5}$	Au	31	800	30	10	0,5	35	kaputt		
2ga006	$1,9 \cdot 10^{-5}$	Au	31	800	30	10	0,5	28	kaputt		
2ga007	$3,8 \cdot 10^{-5}$	Au	32	800	25	10	0,5	34	kaputt		
2ga008	$5,5 \cdot 10^{-5}$	Au	57	800	15	10	0,5	95	10,0	0,6	0,6
2ga009	$9,3 \cdot 10^{-5}$	Au	55	800	20	10	0,5	95	6,9	0,7	0,6
2ga010	$1,2 \cdot 10^{-4}$	Au	56	800	25	10	0,5	45	6,2	1,0	0,6
2ga011	$2,3 \cdot 10^{-5}$	Au	53	800	20	10	0,5	88	6,9	0,2	0,3
2ga012	$1,1 \cdot 10^{-4}$	Au	63	800	23	10	0,5	80	8,1	0,5	0,4
2ga013	$3,8 \cdot 10^{-5}$	Au	60	800	25	10	0,5	75	7,3	0,7	1,0
2ga014	$3,0 \cdot 10^{-4}$	Au	61	800	27	10	0,5	60	5,5	0,8	1,1
2ga015	$2,7 \cdot 10^{-4}$	Au	60	800	30	10	0,5	52	7,9	1,1	1,1
2ga015-2	$2,7 \cdot 10^{-4}$	Au	60	800	30	10	0,5	52	8,0	0,3	0,5
2ga016	$2,0 \cdot 10^{-4}$	Au	61	800	29	10	0,5	57	8,2	2,0	1,4
2ga016-2	$2,0 \cdot 10^{-4}$	Au	61	800	29	10	0,5	57	8,0	0,4	0,2
2ga017	$5,8 \cdot 10^{-5}$	Au	60	800	20	10	2	92	24,1	1,4	1,0
2ga018	$3,5 \cdot 10^{-5}$	Au	59	800	23	10	2	95	27,4	4,3	1,8
2ga019	$6,1 \cdot 10^{-5}$	Au	54	800	31	10	2	78	22,4	1,0	0,7
2ga020	$5,6 \cdot 10^{-5}$	Au	56	800	34	10	2	70	15,4	0,8	0,7
2ga021	$4,4 \cdot 10^{-5}$	Au	57	800	37	10	2	61	12,1	1,0	1,4
2ga022	$9,8 \cdot 10^{-5}$	Au	61	800	26	10	2	85	22,2	1,5	1,3
2ga023	$5,5 \cdot 10^{-5}$	Au	57	800	33	10	2	55	9,9	1,8	0,9
2ga024	$5,3 \cdot 10^{-5}$	Au	60	800	36	10	2	45	5,8	0,6	0,4

## A.5 Goldnanopartikel mit Target E

Tabelle 8: Messergebnisse zu Untersuchungen mit Goldpartikeln an Target E

Name	Druck $p_0$ in [Pa]	Sauerstoffpartialdruck $p_{O_2}$ in [Pa]	Heizertemperatur $T_H$ in [°C]	eingestellte $E_L$ am Laser in [mJ]	Absorber	Frequenz in [Hz]	Zeit in [min]	$E_L$ in [mJ]	$T_C$ in [Kelvin]	Halbwertsbreite FWHM in [°]	$R_{ms}$ in [nm]
2ya058	$2,7 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	35	5	7	57	87,2	0,1016	8,5
2ya059	$9,8 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	35	5	7	57		kaputt	
2ya060	$6,0 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	35	5	7	57	89,7	0,0935	3,9
2ya061	$4,8 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	35	5	7	57	89,6	0,1108	8,3
2ya062	$4,0 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	35	5	7	58		kaputt	
2ya063	$5,4 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	35	5	7	54		kaputt	
2ya064	$1,4 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	33	5	7	57	90,2	0,1125	18,4
2ya065	$3,9 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	33	5	7	60	88,9	0,1009	33,2
2ya066	$3,5 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	35	5	7	61	88,5	0,1005	48,9
2ya067	$2,8 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	35	5	7	61	90,2	0,1303	35,4
2ya068	$8,2 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	36	5	7	60	90,0	0,0820	82,7
2ya069	$4,0 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	36	5	7	57	89,4	0,1087	55,1
2ya070	$2,5 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	36	5	7	58	89,0	0,1222	17,7
2ya071	$3,6 \cdot 10^{-5}$	40	790	800	36	5	7	60	88,5	0,0966	8,4

## Danksagung

An dieser Stelle möchte ich die Gelegenheit nutzen, meinen tiefen Dank all denjenigen gegenüber auszudrücken, die durch ihre Unterstützung zum Gelingen der vorliegenden Diplomarbeit beigetragen haben.

Ich danke meinem Diplomvater und Erstgutachter PD Dr. rer. nat. habil. F. Schmidl für die Vergabe dieses interessanten und fordernden Themas und für die Möglichkeit diese Arbeit in der Arbeitsgruppe schreiben zu können. Darüber hinaus danke ich ihm für seine Geduld und vielfältige Unterstützung.

Mein besonderer Dank gilt Dipl. Phys. V. Große, der mich in meinen wissenschaftlichen Vorhaben unterstützt und mit all seinem fachlichen Wissen und praktischen Erfahrungen zum Gelingen beigetragen hat.

Ein Dank gilt der gesamten Arbeitsgruppe Tieftemperaturphysik, die mich mit einem freundschaftlichen Arbeitsklima unterstützt haben. Insbesondere möchte ich den Diplomandenraum in der Besetzung R. Erlebach, C. Katzer und D. Kuhwald danken, mit denen immer eine enge und fruchtbare Zusammenarbeit möglich war.

Ich danke Dr. Matthias Müller (Otto-Schott-Institut Jena) für die rasche und unkomplizierte Hilfeleistung bei der Anfertigung der Röntgenproben, die als Ersatzmessung für die Halbwertsbreitenbestimmung notwendig waren.

Ich danke Prof. Dr. rer. nat. habil. Markus Rettenmayr für die Übernahme der Zweitkorrektur.

Nicht zuletzt gilt mein besonderer Dank meiner Freundin Katrin, meinen Eltern und Freunden, die mich in meinem Vorhaben immer unterstützt haben. Ohne sie wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.

## Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Diplomarbeit selbständig angefertigt habe. Es wurden nur die in der Arbeit ausdrücklich benannten Quellen und Hilfsmittel benutzt. Wörtlich oder sinngemäß übernommenes Gedankengut habe ich als solches kenntlich gemacht.

Ort, Datum

Unterschrift